

労災疾病臨床研究事業費補助金

多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発

平成28年度 総括・分担研究報告書

研究代表者 栗原 治

平成29 (2017) 年 5月

目次

I. 総括研究報告

- 多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発 3
栗原 治（量子科学技術研究開発機構）

II. 分担研究報告

1. 臨界事故時における外部被ばく線量評価に関する研究 9

- 研究分担者 辻村 憲雄（日本原子力研究開発機構）
矢島 千秋（量子科学技術研究開発機構）
研究協力者 吉田 忠義（日本原子力研究開発機構）
星 勝也（日本原子力研究開発機構）

2. アクチニド核種等における内部被ばく線量評価に関する研究

- 3-1 アクチニド核種等による内部被ばく線量評価に関する研究① 29
研究分担者 金ウンジュ（量子科学技術研究開発機構）
栗原 治（量子科学技術研究開発機構）
研究協力者 大野 雅子（量子科学技術研究開発機構）

- 3-2 アクチニド核種等による内部被ばく線量評価に関する研究② 36
研究分担者 藤田 博喜（日本原子力研究開発機構）
横山 裕也（日本原子力研究開発機構）

3. 皮膚汚染における線量評価に関する研究 41

- 研究分担者 辻村 憲雄（日本原子力研究開発機構）
谷 幸太郎（量子科学技術研究開発機構）
研究協力者 吉田 忠義（日本原子力研究開発機構）
星 勝也（日本原子力研究開発機構）

労災疾病臨床研究事業費補助金
総括研究報告書

労災疾病臨床研究事業費補助金
(総括・分担) 研究報告書

多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発

研究代表者 栗原 治 (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)

研究要旨

緊急被ばく医療の対象となり得る、1) 臨界事故外部被ばく、2) アクチノイド核種等内部被ばく、ならびに 3) 皮膚汚染の各事象に対して、高被ばく者の迅速なトリージを可能とする線量評価手法の開発に着手した。二年目の研究成果として、1) では体表面の γ 線 1cm 線量当量率の測定に基づく高線量被ばく者のスクリーニング方法の開発や、毛髪の放射化に対する中性子スペクトル・入射角依存性の評価、2) では尿試料中のアクチノイド核種を迅速に抽出するための鉄共沈法の最適化、及び、放射性ストロンチウムの迅速分析法の検証、3) では任意の汚染サイズ (^{90}Sr - ^{90}Y , ^{137}Cs) に対する汎用サーベイメータの応答評価、及び、これまで国内外で使用されてきた表面汚染密度-皮膚線量率換算係数の整備などの知見が蓄積された。最終年度は、残りの研究を実施するとともに、本研究で得られた成果を反映した実務的なマニュアルを作成する。

研究分担者

量子科学技術研究開発機構：

金 ウンジュ 主任研究員
矢島 千秋 主任研究員
谷 幸太郎 研究員

日本原子力研究開発機構：

辻村 憲雄 主任研究員
藤田 博喜 マネジャー
永岡 美佳 技術員

研究協力者

量子科学技術研究開発機構：

大野 雅子 技術員

日本原子力研究開発機構：

吉田 忠義 技術副主幹
星 勝也 技術員

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発、整備し、その成果を広く展開することである。本研究では、臨界事故の代表例たるウラン加工施設での臨界事故あるいは汚染（放出）事故の代表例たる原子力発電所事故の際に、対象者の選別（トリージ）及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組まざるを得なかった状況を鑑みるに、緊急被ばく医療対応の迅速性と向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。

B. 研究方法

本研究では、緊急被ばく医療の対象とな

り得る下記の事象に対する迅速線量評価手法の開発を以下の手順で進める。本研究は3年間の予定で実施し、最終年度に得られた成果に基づく実務的なマニュアルを整備する。

(1) 臨界事故時外部被ばく

^{252}Cf 中性子線源を用いるピンポイントの高線量中性子照射を可能とする実験体系を構築し、これを用いて中性子捕獲によって体内に生成される ^{24}Na や ^{38}Cl に対する放射線検出器の応答を実験で評価する。また、計算シミュレーションにより、種々の臨界体系から生じる中性子スペクトルに対する検出器応答や線量を計算する。これらの結果を相互に参照することにより、トリアージに適した線量評価手法を開発する。

(2) アクチノイド核種等内部被ばく

排泄物中のアクチノイド核種の前処理法の最適化やストロンチウムの分析手法の迅速化などの技術的課題について、実験を試行錯誤しながら手法の確立を目指す。また、海外で定期的実施される放射性核種分析に関する試験に参加し、自らが開発した手法の妥当性を評価する。

(3) 皮膚汚染

高汚染を模擬した実験体系を用いて汎用の GM サーベイメータ等の応答を評価するとともに、その応答から皮膚の等価線量への換算表を整備する。

C. 研究結果

(1) 臨界事故時外部被ばく

- 塩化ナトリウム水溶液を封入した水槽型ファントムを用いた ^{252}Cf 中性子照射実験の結果をもとに、短半減期核種 (^{38}Cl) による γ 線の寄与、及び、水槽型ファントムと人体の大きさの違いによる影響を考慮にいったときの、中性子吸収線量と体表面の γ 線 1 cm 線量当量率の関係を調べた。その結果、中性子吸収線量が 1 Gy の場合、平均的な体格の成人男性の腹部表面での γ 線 1 cm 線量当量率は 18~76 μSv (立位にて) に相当する指示値が得られることが分かった。
 - MIRD 頭部ファントムを用いる計算シミュレーションによって、任意のエネルギー及び入射角度の中性子に対する毛髪中の ^{32}S (n, p) ^{32}P 反応率を評価した。中性子の照射方向については、頭部の外周 4 カ所 (前頭部、後頭部、右側頭部、左側頭部) の測定を行い、その中で最小の放射能を与える位置の反対側を主たる入射方向とみなすことができることが分かった。
- #### (2) アクチノイド核種等内部被ばく
- アクチノイド核種を含む尿試料の放射能分析前の前処理工程の時間短縮のため、今年度は鉄共沈法を用いる手法について実験を行い、U, Pu, Am に対して安定した回収率を得るための最適な手順を決定した。前処理工程に要する時間は、従来の湿式灰化法に要する時間 (~28 時間) の約半分 (~15 時間) にまで短縮することができた。開発した手法を検証する場として、仏国 CEA が主催する国際相互比較試験プログラム POCORAD に参加し、主催者から送付

されたサンプルの分析を行い、その結果を報告した。また、Pu 試料の迅速定量を行うため、使用済燃料中に Pu と共存する ^{241}Am から放出される約 60 keV の γ 線の測定する方法を検討した。

- 誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)の代表的核種に対する検出下限値の算出、ならびに、IAEA のマニュアルを参考にして、尿中 Sr の迅速分析法の試験を行った。同方法に要する時間は約 2 日であり、Sr の回収率は 80%程度であった。

(3) 皮膚汚染

- ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている 2 種類の電離箱式線量当量率サーベイメータの指示値と皮膚線量率の関係を実験と計算によって評価した。また、汚染サイズに対する計数率-線量率換算係数の依存の程度を明らかにした。
- これまで国内外で広く利用されてきた核種毎の表面密度-皮膚線量率換算係数を文献値ごとに整理するとともに、VERSKIN4 コードを用いて新たに計算した換算係数を追加し、これらと比較した。その結果、換算係数の相違は、換算係数の値が極端に小さい一部の核種を除き、最大でも約 50%であった。

D. 考察

(1) 臨界事故時外部被ばく

臨界事故に際し、体内に生成された ^{24}Na や ^{32}P 中性子放射化物を測定することにより、その人の外部被ばく線量を迅速

に評価することができる。ただし、外部被ばく線量は中性子スペクトルの形状に大きく依存するため、臨界事故直後に行う評価法としては、保守的ではあるが経験則に基づく以下の関係を行うことが適当である。

- ^{24}Na を用いる評価法

$$D_T(\text{Gy}) = 3 \times 10^{-6} A (\text{Bq})$$

ここで、 D_T は γ 線の寄与を含む全身線量、 A は $t=0$ において全身に生成された ^{24}Na 生成量である。

- ^{32}P を用いる評価法

$$D_N(\text{Gy}) = 1.2 \times A (\text{Bq/g})$$

ここで、 D_N は中性子線量、 A は $t=0$ における外皮中の生成放射能密度である。

ただし、 ^{24}Na を用いる評価法では、ホールボディカウンタ (WBC) を用いて全身中の ^{24}Na が定量することができるが [1]、事故直後では他の短半減期核種による体表面汚染が存在することから注意が必要である [2]。理想的には、事故 4 時間後以降に血液試料の測定を行うことが推奨されている。 ^{32}P を用いる評価法は、 ^{32}P の物理半減期が比較的長い (14.28 日) であることから、時間的な制約は ^{24}Na に比べて受けないものの、毛髪等の測定に関して検討が必要である。今後の展開として、分担研究報告書にも記載されているように、 ^{24}Na と ^{32}P が生成される反応断面積の中性子エネルギーによる違いを考慮した線量評価法の構築が考えられる。また、JCO 臨界事故の対応で認識された実務的な諸課題、すなわち、NaI スペクトロメータによる ^{24}Na (1.369 keV) と ^{40}K (1.460 keV) の複合ピークの解析、歯科治療等で使われる金の放射化により生成される

^{198}Au による外部被ばく、(微量ではあるが)高被ばく者から受ける医療者の二次被ばく等について整理しておくことが有用である。

(2) アクチノイド核種等内部被ばく

バイオアッセイの迅速化のボトルネックとなる生体試料の前処理法について改善を試みた。次に時間の短縮が図れる工程は放射能測定(従来法は約1日)であるが、トリアージを必要とする線量(例えば預託実効線量で100 mSv)から算出される生体試料中の放射能から、これに要する時間の短縮化が図れると思われる。

(3) 皮膚汚染

汚染のレベルに応じて最適なサーベイメータの選定が必要であり、そのための判断材料が今年度の研究により提供された。また、これまでに広く利用されてきた汚染部位の表面密度-皮膚線量率換算係数について引用元の違いにより相違があることが分かった。最終年度は、作成するマニュアルにおいて推奨する換算係数の数値を提示するとともに、GMサーベイメータの指示値を用いて、種々の核種に対する表面密度から皮膚線量を簡易に計算するツールの作成などが望まれる。放射性核が皮膚に付着した際の表面放出率の実験的評価も重要である。

E 結論

本研究では緊急被ばく医療の対象となり得る事象-(1) 臨界事故時外部被ばく、(2) アクチノイド核種等内部被ばく、及び、(3) 皮膚汚染-に対し、多数の被検者から高被ばく者を迅速に選別(トリアージ)するため

の被ばく線量評価手法の開発を進め、実務上の有用な結果が得られた。本研究の特徴は、多様な被ばく状況に対応した、また、汎用の装置を用いた線量評価手法の構築することであり、緊急被ばく医療対応の実行性向上に資する。最終年度は、これまでの研究成果を活用し、実務的なマニュアルの作成を行う予定である。

参考文献

- [1] Momose et al. J. Radiat. Res. (2001).
- [2] Miele and Lebaron-Jacobs. Radio-protection (2008).

F. 健康危険情報

該当無し

G. 研究発表

1. 口頭発表

- [1] 辻村憲雄, 吉田忠義, 高田千恵; 臨界事故ドシメトリのための TLD バッジの応答関数の評価, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2A09, (2016).
- [2] 辻村憲雄, 高橋史明, 高田千恵; 臨界事故ドシメトリのための TLD バッジレスポンスの目録, 日本保健物理学会第 49 回研究発表会, P26, (2016).

2. 論文発表

- [1] C. Li, C. Bartizel, P. Battisti, A. Böttger, C. Bouvier, A. Capote-Cuellar, Z. Carr, D. Hammond, M. Hartmann, T. Heikkinen, R. L. Jones, E. Kim, R. Ko, R. Koga, B. Kukhta, L. Mitchell, R. Morhard, F. Paquet, D. Quayle, P. Rulik, B. Sadi1, A. Sergei, I. Sierra, W. Oliveira Sousa

and G. Szabó. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of second exercise. Radiat. Prot. Dosim 174 (4): 449-456 (2017).

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む）

なし

労災疾病臨床研究事業費補助金
分担研究報告書

労災疾病臨床研究事業費補助金
(総括・分担) 研究報告書

臨界事故時における線量評価に関する研究

研究分担者 辻村 憲雄 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)
谷 幸太郎 (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)
研究協力者 吉田 忠義 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)
星 勝也 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)

研究要旨

臨界事故時に、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となるような高線量の被ばくを受けた者を迅速に選別し、その被ばく線量を評価する手法を開発・整備することを目的に、(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率の測定に基づく高線量被ばく者のスクリーニング法、(2) 毛髪放射化の中性子スペクトル・入射角度依存、さらに(3) 放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性子照射を行うための簡易的な実験装置の開発について、研究を実施した。その結果、以下の知見を得た。

(1) 塩化ナトリウム水溶液を入れた水槽形ファントムを用いた ^{252}Cf 中性子照射実験の結果をもとに、短半減期核種 (^{38}Cl) による γ 線の寄与、及び水槽形ファントムと人体の大きさ (及び測定時の姿勢) の影響を考慮に入れたときの、中性子吸収線量 と体表面の γ 線 1cm 線量当量率の関係を調べた。中性子吸収線量が 1 Gy の場合、腹部表面において、立位で 18~76 $\mu\text{Sv/h}$ 、座位で 26~109 $\mu\text{Sv/h}$ に相当する γ 線 1cm 線量当量指示値が得られることが分かった。

(2) MIRD 頭部ファントムを用いる計算シミュレーションによって、任意のエネルギー及び入射角度の中性子に対する毛髪中の $^{32}\text{S}(\text{n,p})^{32}\text{P}$ 反応率を評価した。さらに、文献の中性子スペクトルを用いて多様な中性子スペクトルに対する反応率の依存の程度を明らかにした。また、競合する反応 ($^{31}\text{P}(\text{n},\gamma)^{32}\text{P}$ や $^{31}\text{P}(\text{n,p})^{31}\text{Si}$) による影響を明らかにした。

(3) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所に既設の ^{252}Cf 中性子照射装置を利用して、放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性子を均一に照射するための装置を製作した。計算シミュレーションによって、試料取り付け位置における中性子スペクトル、取り付け位置のずれによる変化の程度を明らかにした。インジウム箔の照射実験によって計算の妥当性を確認した。

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量の被ばくが想定される様々な事故に際し、多くの被災者の

中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開すること

である。事故の代表例たるウラン加工施設での臨界事故の際に、対象者の選別（トリアージ）及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組みざるを得なかった状況を鑑みるに、本研究は、緊急被ばく医療対応の迅速性と実行性の向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。

B. 研究方法

(1) 体表面の γ 線 1 cm 線量当量率に基づくスクリーニング

中性子曝露によって体内に生成される ^{24}Na 等が γ 線放出核種であることに着目し、これによる体表面での γ 線 1 cm 線量当量率を一般的なエネルギー補償回路付き NaI(Tl)線量当量率サーベイメータで観測することによって、高線量被ばくを受けたかどうかを識別する方法を検討する。平成 28 年度は、サーベイメータ指示値の変動要因になる得る次の二つの影響について調査する。

① 短半減期核種による影響

平成 27 年度に実施した実験（塩化ナトリウム水溶液を入れた水槽形ファントム（高さ 300 mm×幅 300 mm×奥行 150 mm）に対する ^{252}Cf 中性子照射）の結果及び計算シミュレーション結果を再解析し、 $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ 反応に加えて生じる $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)$ 反応によって生成される ^{38}Cl γ 線による影響を調べる。

② 被測定者の体格・姿勢による影響

水槽形ファントムに比べて、より人体の形状に近い条件における体表面 γ 線 1 cm 線量当量率を MCNP による計算シミュレーションによって調べる。ここで使用する計算モデルは、頭、頸、胸・腹、腰及び手

足を表す大小 10 個の円柱又は楕円柱ボトルからなる BOMAB ファントムである。計算では、 ^{24}Na 及び ^{38}Cl が一様な放射能濃度で体内に分布すると仮定し、水を封入したこのボトル内から ^{24}Na (1.369 MeV と 2.754 MeV) 及び ^{38}Cl (1.642 MeV と 2.168 MeV) のガンマ線をランダムに発生させたときの、股下から距離 20 cm、腹部表面から距離 1 cm における γ 線 1 cm 線量当量（周辺線量当量）率を求める。このとき、指定された線源領域のうちどこから線源光子が発生したかを追跡する MCNP の機能を利用して、発生源別に線量当量率の内数も調べる。

BOMAB ファントムのサイズは、ANSI [1]に定める標準サイズ（身長 170 cm 相当）と大きなサイズ（身長 188 cm 相当）の二種類とし、直立した姿勢（立位）での計算のほか、前者については、椅子に腰かけた姿勢（座位）、さらに、そのまま上体を前屈させた姿勢（前屈座位）についても計算を行う。それぞれの計算モデルを図 1 に示す。

(2) 頭髪の放射化の中性子スペクトル及び入射角度依存性

毛髪 1 g には、硫黄 43.6 (± 4.6) mg のほかにリンが 0.171 (± 0.024) mg 含まれる[2]。中性子によるこれらの放射化について、MIRD の頭部ファントムモデルと MCNP を用いてシミュレーション計算を行う。

頭部ファントムモデルの前頭部、左右の側頭部、後頭部及び頭頂の表面に縦 2 cm×横 2 cm×厚さ 1 cm のセルを設定し（図 2）、一方向から面平行ビームで頭部全体に中性子を入射させたときの、そのセル内における体積平均中性子フルエンスを計算する。

これに、単位体積当たり 1 g の毛髪が含まれると仮定して算出した(毛髪 1 g 相当の)硫黄及びリンの原子個数密度と核反応断面積[3]を乗じて、毛髪 1 g 当たりの反応率を求める。ここで着目する核反応は、 $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ 、 $^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$ 、及び $^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$ である。 ^{32}P は、中性子線量評価に使用される核種であり、半減期 14.26 日で最大エネルギー 1.711 MeV の β 線を放出する。一方、 ^{31}Si は、半減期 2.622 時間で最大エネルギー 1.490 MeV の β 線を放出する。

熱中性子 \sim 15 MeV を適当な間隔で分割した 21 群の中性子及び ^{252}Cf 線源からの中性子を、正面 (0 度) から頭部全体に一樣に入射させる。このとき、座標変換カード指定によって計算体系そのものを、天頂から見て反時計回りに 30 度ステップで水平回転させることで入射角度を変えた計算も行う。

計算によって得られた各反応について、単位中性子フルエンス当たりの反応率に生成される核種の壊変定数を乗じて放射能に換算する。これらは、臨界事故時線量評価プログラム RADAPAS[4]に組み込みの計 140 の中性子スペクトル (金属又は溶液系での ^{235}U の核分裂+様々な遮へい (普通コンクリート、重コンクリート、鉄及び鉛)) 及び中性子フルエンス \rightarrow 吸収線量換算係数 (文献[5], 表 XIV の Heavy particle 成分) とのフォールディング計算によって、吸収線量当たりに換算する。

(3) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

中性子線量当量率サーベイメータ等の校正に使用している既設の中性子照射装置を利用して、毛髪などの生体試料や放射化箔

に高線量の中性を照射するための装置を平成 27 年度に製作した (図 3(a))。今年度は、当該装置について、設計図面に基づいた計算モデルを構築し、MCNP による試料取り付け位置における中性子フルエンスの強度等についてシミュレーション計算を行う。さらに、放射化箔の照射実験による検証作業を実施する。

装置は、公称放射能 1 GBq の ^{252}Cf 中性子線源と、それを地下の遮へい容器から案内管に沿って空気圧で打ち上げ、床から 120 cm の高さに電磁石で保持する既設照射装置の外周に取り付けるもので、中空円筒の試料支持具 (アクリル製) とそれを線源案内管の周りで等速回転させるメカニズムからなる。ここで、回転は、既設線源案内管の非対称形状 (空気をパージする窓や線源位置確認センサー) によって引き起こされる中性子フルエンスの空間分布の歪みを均一化する役目を果たす。図 3(b) に MCNP によるその計算モデルを示す。

計算では、内径 40 mm の試料支持具の内面に、厚さ 0.005 cm (後述する箔の厚さに相当) \times 幅 0.1 cm の帯状セルを設置し、線源の実効中心高さを 0 cm としたとき、高さ +1.0 cm \sim -1.0 cm の範囲における中性子フルエンスの変化を調べる。また、空気をパージする窓に向いた側 4 カ所、窓の無い側 4 カ所に 1 cm \times 1 cm \times 0.005 cm のインジウム箔を取り付け、箔内における $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$ 反応率を計算する。

さらに、計算体系と同じ体系でインジウム箔の照射実験を行い、高純度 Ge 半導体検出器による測定 ($^{115\text{m}}\text{In}$ からの 336 keV γ 線) によって誘導放射能を求め、計算の検証を行う。

(倫理面への配慮)

本研究は、特定個人を対象とするものではないので人権擁護上の配慮等を特に必要としない。

C. 研究結果

(1) 体表面の γ 線 1 cm 線量当量率に基づくスクリーニング

①短半減期核種影響

平成 27 年度に実施した塩化ナトリウム水溶液実験¹について、180 分間の中性子照射終了後におけるファントム表面の γ 線 1cm 線量当量率の計算値と実測値（照射終了後 10 分間経過）を表 1 に示す。同表には、実験と積算中性子フルエンスは同じであるが、照射時間をゼロ（瞬間的な照射）としたときの線量当量率の計算値もあわせて示す。

実験条件では、照射終了直後に 0.66 $\mu\text{Sv/h}$ の線量当量率の観測が期待され、このうちの約 1/3 は ^{38}Cl からの γ 線の寄与による。一方、瞬間的な中性子照射（臨界事故でしばしばみられる）の場合、線量当量率は照射直後で 1.3 $\mu\text{Sv/h}$ 、そのうち約 2/3 を ^{38}Cl の γ 線が占める。線量当量率と内訳を経過時間の関数として表したものを図 4 に示す。図中のインサートは、 ^{24}Na の γ 線からの線量当量率に対する全線量当量率の比である。照射後約 4 時間経過するまでは ^{38}Cl からの γ 線寄与が存在することが確認された。

②被測定者の体格・姿勢による影響

表 1 に示した放射能濃度の ^{24}Na と ^{38}Cl が BOMAB ファントム中に含まれるときの、

腹部表面（股下から 20 cm）における線量当量率の計算結果を表 2 に示す。瞬間的な中性子照射の直後では、水槽型ファントム表面での線量当量率 1.3 $\mu\text{Sv/h}$ に対し、標準サイズの BOMAB ファントムでは、立位で 1.8 $\mu\text{Sv/h}$ 、座位で 2.6 $\mu\text{Sv/h}$ さらに前屈座位で 2.8 $\mu\text{Sv/h}$ となった。この変化は、放射化生成物の絶対量が、体積の大きい人体形状ファントムの方が多いこと、さらに座位～前屈座位の場合、腹部からだけでなく大腿部からの線量当量率寄与が増加するためである。また、被測定者の体格によって 20%程度の変化があり得ることが確認された。

(2) 頭髪の放射化の中性子スペクトル及び入射角度依存性

計算によって得られた単位中性子フルエンス当たりに毛髪 1 g 中に生成される放射化生成物の放射能のエネルギー依存性を表 3 と図 5 に示す。曝露直後の場合、半減期の短い ^{31}Si 放射能は ^{32}P の放射能の約 1/4 になる。これら核種の β 線最大エネルギーは同等であり、両者の測定による分離は困難であるため、事故直後の測定では注意を要する。また、 ^{32}P は熱中性子との $^{31}\text{P}(n, \gamma)$ によってもわずかに生成される。

表 4 及び図 6 に、 ^{252}Cf 中性子フルエンス当たりに毛髪 1 g 中に生成される放射化生成物の放射能の入射角度依存性を示す。ここでは、正面入射は 0 度、右側頭部入射は +90 度である。図 6 から明らかなように、採取ポイントから中性子の入射が“見える”場合—例えば、前頭部の毛髪であれば、0 度入射と +90 度入射の場合—生成される ^{32}P （又は ^{31}Si ）の放射能に有意差はほとんどない。したがって、頭部の外周 4 箇所から

¹ 平成 27 年分担研究報告書の表 1 の訂正（正誤表）を 16 ページに記す。

頭髪を採取する場合、その中で最小の放射能を与える位置の反対側を主たる中性子の向きとみなすことができる。なお、頭頂部の頭髪については入射角度による変化は見られない。

毛髪 1 g 中における $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ 反応について、臨界事故時に想定される計 140 個の中性子スペクトルについて整理した結果を図 7 (平均中性子エネルギーとエネルギー別のフルエンスの内訳) と図 8 (中性子吸収線量 1 Gy 当たりの ^{32}P 放射能) に示す。図の横軸は、プログラム RADAPAS 組み込みの中性子スペクトルの番号である。普通コンクリート及び重コンクリート遮へい条件では、中性子吸収線量 1 Gy 当たりの ^{32}P 放射能に大きな変化はなく、0.8~1.2 Bq/Gy であった。

(3) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

計算によって求めた試料固定具内面における中性子フルエンスの位置による変化を図 9 に示す。ここで、位置 $z=0$ は、 ^{252}Cf 線源の実効中心の高さに相当する。図の横軸は、1 個の中性子が線源から放出されたときの中性子フルエンスに、球の立体角 (4π) と試料支持具内壁までラジアル距離 4.0 cm の二乗を乗じた値であり、点線源かつ線源周囲に散乱体が存在しない場合、 $z=0$ で 1.0 になる。その値に比べて約 20% 以上も中性子フルエンスが増加しているが、これは線源を保持するホルダからの散乱線の寄与によるものである[6]。試料を取り付ける位置によってフルエンスの強度にわずかな相違が生じるが、その変動幅は、 $z=-5\sim+5$ mm の範囲では $\pm 1\%$ 以下である。また、同じ範囲 (-5 mm から $+5$ mm) における平均中性子スペクトルを図 10 に示す。アクリル製の

試料支持具による散乱中性子が僅かに存在するが、速中性子による反応が主となる $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$ や $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ への影響はほとんどないと考えてよい。

当該装置を用いてインジウム箔の中性子照射を行い、HPGe 測定によって得られた $^{115\text{m}}\text{In}$ 誘導放射能を表 5 に示す。MCNP による理論計算値と $\pm 15\%$ で一致することが確認された。

D. 考察

(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率に基づくスクリーニング

平成 27 年度報告書から、中性子吸収線量 1 Gy のとき $14\sim 59$ Bq/cm³ の ^{24}Na が生成される。したがって、瞬間的な照射条件下では、表 1 に示した ^{24}Na 放射能濃度 (1.4 Bq/cm³) と γ 線 1 cm 線量当量率 (1.3 $\mu\text{Sv/h}$) の関係から、短半減期核種による影響を含む場合、同じ中性子線量で $13\sim 55$ $\mu\text{Sv/h}$ の線量当量率指示値が期待される。さらに、表 2 の結果に基づき、水槽形ファントムと人体の大きさの違いを考慮に入れると、同じ中性子吸収線量 (1 Gy) に対して、曝露直後の人体表面の線量当量率は、

立位：18~76 $\mu\text{Sv/h}$

座位：26~109 $\mu\text{Sv/h}$

となる。中性子スペクトルによってやや幅が生じるが、高線量被ばくを受けた者をスクリーニングする目的においては、中性子吸収線量当たりの指示値がもっとも低くなる条件の数値を使えばよい。

(2) 頭髪の放射化の中性子スペクトル及び入射角度依存性

図 8 に示した中性子吸収線量 1 Gy 当たりの ^{32}P 放射能は、MeV オーダーのエネルギー

一を持つ速中性子の割合によってほぼ決まり、被弾性散乱によって中性子エネルギーを効率的に下げる性質を持つ鉄・鉛遮へい条件で大きな変化が見られた。

中性子吸収線量 1 Gy 当たりの ^{32}P 放射能の値を選択する場合、プログラム RADAPAS に組み込みの中性子スペクトル (番号 1~140) の中から、事故と線源条件が近いスペクトル番号のものを選択すればよい。このとき、 ^{24}Na に基づいて評価した線量と ^{32}P に基づいて評価した線量の整合が取れるようスペクトル選択を繰り返し行うといった対応が、最も確からしい被ばく線量の推定を与えると考えられる。

(3) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

中性子放出率 8.6×10^7 n/s (平成 29 年 3 月 23 日) の場合、試料支持具内壁で約 56 mGy/h の中性子吸収線量率が得られる。毛髪試料のテスト照射の結果、端窓 GM 計数管式サーベイメータによる有意な計数率の上昇を観測した。現在、その分析を進めている。

E. 結論

臨界事故時に、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となるような高線量の被ばくを受けた者を迅速に選別し、その被ばく線量を評価する手法を開発・整備することを目的に、(1) 体表面の γ 線 1 cm 線量当量率の測定に基づく高線量被ばく者のスクリーニング法、(2) 毛髪の放射化のスペクトル・入射角度依存、さらに(3) 放射化箔や毛髪などの試料に対して、高線量の中性子照射を行うための簡易的な実験装置の開発について研究を実施した。その結果、以下の知見を得た。

(1) 塩化ナトリウム水溶液を入れた水槽形ファントムを用いた ^{252}Cf 中性子照射実験の結果をもとに、短半減期核種 (^{38}Cl) による γ 線の寄与、及び水槽形ファントムと人体の大きさ (及び測定時の姿勢) の影響を考慮に入れた場合の、中性子吸収線量と体表面の γ 線 1 cm 線量当量率の関係を調べた。中性子吸収線量が 1 Gy のとき、腹部表面において、立位で 18~76 $\mu\text{Sv/h}$ 、座位で 26~109 $\mu\text{Sv/h}$ に相当する γ 線 1cm 線量当量指示値が得られることが分かった。

(2) MIRD 頭部ファントムを用いる計算シミュレーションによって、任意のエネルギー及び入射角度の中性子に対する毛髪中の $^{32}\text{S}(\text{n,p})^{32}\text{P}$ 反応率を評価した。さらに、文献の中性子スペクトルを用いて多様な中性子スペクトルに対する反応率の依存の程度を明らかにした。また、競合する反応 ($^{31}\text{P}(\text{n},\gamma)^{32}\text{P}$ や $^{31}\text{P}(\text{n,p})^{31}\text{Si}$) による影響を明らかにした。

(3) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所に既設の ^{252}Cf 中性子照射装置を利用して、放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性子を均一に照射するための装置を製作した。計算シミュレーションによって、試料取り付け位置における中性子スペクトル、取り付け位置のずれによる変化の程度を明らかにした。インジウム箔の照射実験によって計算の妥当性を確認した。

文献

[1] ANSI, Specifications for the Bottole Manikin Absorption Phantom, ANSI/HPS N13.35-2009, (2009).

- [2] 丸山隆司, 外部被曝の線量評価, 第 19 回放射医研シンポジウム「緊急時の被曝評価と医療」報文集, NIRS-M-71, 放射線医学総合研究所, (1989).
- [3] K. Kobayashi, T. Iguchi, S. Iwasaki, et al., JENDL Dosimetry File 99 (JENDL/D-99), JAERI 1344, Japan Atomic Energy Research Institute (2002)
- [4] F. Takahashi, Program for Rapid Dose Assessment in Criticality Accident, RADAPAS, JAEA-Data/Code 2006-019 (2006).
- [5] International Atomic Energy Agency, Dosimetry for Criticality Accidents—A Manual, IAEA Technical Report Series No. 211, (1982).
- [6] N. Tsujimura, T. Yoshida and T. Momose, Calculations of anisotropy factors for radionuclide neutron sources due to scattering from source encapsulation and support structures,

Radiat. Prot. Dosim. **126**, 168–173 (2007).

F. 健康危険情報

該当無し

G. 研究発表

口頭発表

辻村憲雄, 吉田忠義, 高田千恵; 臨界事故ドシメトリのための TLD バッジの応答関数の評価, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2A09, (2016).

辻村憲雄, 高橋史明, 高田千恵; 臨界事故ドシメトリのための TLD バッジレスポンスの目録, 日本保健物理学会第 49 回研究発表会, P26, (2016).

H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

なし

平成 27 年度分担研究報告書の訂正

誤

表 1 照射終了後における塩化ナトリウム水溶液中の放射能濃度 (Bq/cm³)

	照射時間 (分) : 冷却時間 (分)	²⁴ Na	³⁸ Cl
HPGe	180 : 0	6.0 (± 9.1%)	—
MCNP*	180 : 0	6.4 (± 0.3%)	9.3 (± 0.3%)
	180 : 10	6.3 (± 0.3%)	7.7 (± 0.3%)

* 断面積ライブラリに JENDL 3.3 を使用

正

表 1 照射終了後における塩化ナトリウム水溶液中の放射能濃度 (Bq/5 cm³)

	照射時間 (分) : 冷却時間 (分)	²⁴ Na	³⁸ Cl
HPGe	180 : 0	6.0 (± 9.1%)	—
MCNP*	180 : 0	6.4 (± 0.3%)	9.3 (± 0.3%)
	180 : 10	6.3 (± 0.3%)	7.7 (± 0.3%)

* 断面積ライブラリに JENDL 3.3 を使用

また、表 1 の変更に伴い、D.考察の(1)も次のように訂正する。

誤

この中性子吸収線量と ²⁴Na 濃度の関係 (1 Gy = ²⁴Na: 14~59 Bq/cm³) と、C.(1)で示した γ 線 1cm 線量当量率と ²⁴Na 等濃度の関係 (1 μ Sv/h = ²⁴Na: 10 Bq/cm³ + ³⁸Cl: 12 Bq/cm³) の比較から、最終的に、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 1.4~5.9 μ Sv/h という関係が得られる。

正

この中性子吸収線量と ²⁴Na 濃度の関係 (1 Gy = ²⁴Na: 14~59 Bq/cm³) と、C.(1)で示した γ 線 1cm 線量当量率と ²⁴Na 等濃度の関係 (1 μ Sv/h = ²⁴Na: 2.0 Bq/cm³ + ³⁸Cl: 2.4 Bq/cm³) の比較から、最終的に、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 7~30 μ Sv/h という関係が得られる。

表1 MCNP 計算によるファントム表面での γ 線 1cm 線量当量率
(括弧内は測定値)

	照射時間 (分) : 照射終了後経過時間 (分)		
	180 : 10	180 : 0	0* : 0
放射能濃度(Bq/cm ³)			
²⁴ Na 濃度	1.3 ± 0.3%	1.3 ± 0.3%	1.4 ± 0.3%
		(実測 1.3 ± 9.1%)	
³⁸ Cl 濃度	1.5 ± 0.3%	1.9 ± 0.3%	6.4 ± 0.3%
1 cm 線量当量率(μSv/h)			
²⁴ Na 1.369 MeV	0.16	0.16	0.17
²⁴ Na 2.754 MeV	0.27	0.27	0.29
²⁴ Na 合計	0.42	0.43	0.46
³⁸ Cl 1.642 MeV	0.074	0.089	0.31
³⁸ Cl 2.168 MeV	0.12	0.15	0.51
³⁸ Cl 合計	0.20	0.24	
²⁴ Na + ³⁸ Cl 合計	0.62	0.66	1.3
	(実測 0.6)		

* 瞬間的な照射を仮定 (ただし, 積算中性子フルエンスは 180 分間照射と同じ)

表2 水槽形ファントム及び BOMAB ファントムの表面 (1 cm) における
 γ 線 1cm 線量当量率の時間変化
(水溶液中に生成された ^{24}Na 及び ^{38}Cl の放射能濃度は表 1 を参照)

照射後 経過時間 (h)	実験条件*		瞬間的な照射 (積算中性子フルエンスは実験条件と同じ)			
	平板水 ファントム	平板水 ファントム	BOMAB ファントム 立位 ^a	BOMAB ファントム 座位 ^b	BOMAB ファントム 座位前屈 ^c	BOMAB 大 ファントム 立位 ^d
0	0.66	1.3	1.8	2.6	2.8	2.1
0.25	0.60	1.1	1.5	2.2	2.4	1.8
0.50	0.55	0.92	1.3	1.9	2.0	1.5
0.75	0.52	0.80	1.1	1.6	1.7	1.3
1	0.49	0.71	1.0	1.4	1.5	1.2
1.5	0.44	0.58	0.83	1.2	1.3	0.98
2	0.42	0.51	0.72	1.0	1.1	0.85
3	0.38	0.43	0.61	0.87	0.94	0.72
4	0.36	0.39	0.55	0.79	0.85	0.66
5	0.34	0.37	0.52	0.75	0.80	0.62
6	0.32	0.35	0.49	0.71	0.76	0.59
7	0.31	0.33	0.47	0.68	0.73	0.56
8	0.30	0.32	0.45	0.64	0.69	0.53
9	0.28	0.30	0.43	0.62	0.66	0.51
10	0.27	0.29	0.41	0.59	0.63	0.49
15	0.21	0.23	0.33	0.47	0.50	0.38
20	0.17	0.18	0.26	0.37	0.40	0.31
25	0.13	0.14	0.20	0.29	0.32	0.24
30	0.11	0.11	0.16	0.23	0.25	0.19
35	0.085	0.091	0.13	0.18	0.20	0.15
40	0.067	0.072	0.10	0.15	0.16	0.12
45	0.053	0.057	0.081	0.12	0.12	0.10
50	0.042	0.045	0.064	0.092	0.10	0.076

- a. 寸法は文献 (ANSI/HPS N13.35, Table 1) に基づく。
b. 大腿部については、その容積が立位の場合と同じになるよう長さを調整した
c. 胴体部分の前屈角度：30 度。
d. 寸法は文献 (ANSI/HPS N13.35, Table A6) に基づく。

表3 単位中性子フルエンスあたりに毛髪1g中に生成される誘導放射能(曝露直後),採取部位:前頭部(前額)

中性子 エネルギー (MeV)	前方入射						側面入射						後方入射					
	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$		$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$		$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$		$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$	
	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%
1.49E+01	1.5E+02	0.4%	3.8E-03	3.0%	3.0E+01	0.4%	1.6E+02	0.5%	4.2E-03	2.7%	3.2E+01	0.5%	4.1E+01	0.8%	3.3E-03	3.1%	8.6E+00	0.8%
9.05E+00	1.6E+02	0.4%	6.7E-03	2.4%	3.4E+01	0.4%	1.7E+02	0.5%	7.0E-03	2.2%	3.6E+01	0.5%	2.9E+01	0.9%	4.7E-03	2.6%	6.3E+00	0.9%
5.49E+00	1.2E+02	0.4%	1.0E-02	1.9%	2.6E+01	0.4%	1.2E+02	0.5%	1.0E-02	1.8%	2.7E+01	0.5%	9.4E+00	1.4%	5.2E-03	2.7%	2.1E+00	1.4%
3.33E+00	4.7E+01	0.4%	1.5E-02	1.5%	1.3E+01	0.4%	4.8E+01	0.6%	1.4E-02	1.6%	1.3E+01	0.6%	1.4E+00	2.4%	5.8E-03	2.5%	4.1E-01	2.3%
2.02E+00	1.7E+00	0.7%	2.1E-02	1.3%	1.1E+00	0.6%	1.7E+00	1.0%	1.8E-02	1.4%	1.1E+00	0.8%	1.4E-02	7.4%	5.4E-03	2.7%	1.0E-02	5.7%
1.22E+00	5.0E-03	0.6%	2.7E-02	1.1%	1.7E-02	0.7%	5.1E-03	0.9%	2.1E-02	1.3%	1.8E-02	1.0%	8.0E-06	15.6%	3.6E-03	3.2%	2.9E-05	16.5%
7.43E-01			3.2E-02	1.1%	3.0E-08	2.5%			2.2E-02	1.3%	2.8E-08	3.6%			2.9E-03	3.4%		
4.50E-01			3.4E-02	1.1%					2.1E-02	1.5%					1.7E-03	4.3%		
2.73E-01			4.1E-02	1.1%					2.3E-02	1.4%					1.4E-03	4.5%		
1.66E-01			5.1E-02	1.1%					2.7E-02	1.9%					9.5E-04	5.4%		
8.65E-02			5.2E-02	1.0%					2.2E-02	1.9%					8.1E-04	5.8%		
2.48E-02			5.6E-02	0.8%					2.2E-02	1.3%					5.8E-04	6.5%		
7.10E-03			6.5E-02	0.8%					2.3E-02	1.3%					5.3E-04	6.9%		
2.03E-03			7.4E-02	0.8%					2.6E-02	1.2%					4.8E-04	7.1%		
5.83E-04			8.5E-02	0.7%					3.0E-02	1.1%					4.2E-04	7.2%		
1.67E-04			9.9E-02	0.6%					3.6E-02	1.0%					3.7E-04	7.6%		
4.79E-05			1.2E-01	0.6%					4.4E-02	0.9%					3.7E-04	8.1%		
1.37E-05			1.4E-01	0.5%					5.7E-02	0.7%					3.1E-04	9.8%		
3.93E-06			1.7E-01	0.5%					7.6E-02	0.6%					3.0E-04	8.6%		
1.13E-06			2.2E-01	0.4%					1.0E-01	0.5%					1.8E-04	10.6%		
4.14E-07			5.6E-01	0.4%					3.2E-01	0.6%					8.2E-05	15.2%		
1.00E-04																		

表4 単位中性子フルエンスあたりに毛髪1g中に生成される誘導放射能（曝露直後）

採取位置	入射角度	²⁵² Cf						熱中性子	
		³² S(n,p) ³² P		³¹ P(n,γ) ³² P		³¹ P(n,p) ³¹ Si		³¹ P(n,γ) ³² P	
		pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%	pBq cm ²	%
前頭部	0	3.5E+01	0.6%	2.2E-02	1.1%	8.3E+00	0.5%	5.6E-01	0.4%
	30	3.5E+01	0.6%	2.2E-02	1.1%	8.3E+00	0.6%		
	60	3.5E+01	0.7%	2.0E-02	1.1%	8.4E+00	0.6%		
	90	3.5E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.4E+00	0.7%	3.2E-01	0.6%
	120	1.9E+01	0.9%	1.1E-02	1.5%	4.6E+00	0.9%		
	150	5.0E+00	1.6%	6.4E-03	2.4%	1.2E+00	1.6%		
	180	2.8E+00	2.1%	4.7E-03	2.5%	6.5E-01	2.1%	8.2E-05	15.2%
右側頭部	0	3.6E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.6E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%
	30	3.4E+01	0.7%	2.4E-02	1.0%	8.2E+00	0.6%		
	60	3.4E+01	0.6%	2.8E-02	1.0%	8.3E+00	0.6%		
	90	3.5E+01	0.6%	3.0E-02	0.9%	8.4E+00	0.5%	5.8E-01	0.4%
	120	3.5E+01	0.6%	2.8E-02	1.0%	8.4E+00	0.6%		
	150	3.4E+01	0.7%	2.4E-02	1.0%	8.3E+00	0.6%		
	180	3.6E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.6E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%
左側頭部	0	3.6E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.6E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%
	30	8.6E+00	1.4%	1.1E-02	1.5%	2.0E+00	1.3%		
	60	5.3E+00	1.6%	1.1E-02	1.5%	1.2E+00	1.5%		
	90	4.8E+00	1.6%	1.1E-02	1.6%	1.1E+00	1.6%	5.2E-04	6.6%
	120	5.1E+00	1.6%	1.1E-02	1.5%	1.2E+00	1.5%		
	150	8.9E+00	1.3%	1.1E-02	1.5%	2.1E+00	1.3%		
	180	3.6E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.6E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%
後頭部	0	2.8E+00	2.2%	4.7E-03	2.3%	6.5E-01	2.1%	8.9E-05	14.2%
	30	4.9E+00	1.6%	6.4E-03	2.0%	1.1E+00	1.6%		
	60	1.9E+01	0.9%	1.1E-02	1.4%	4.5E+00	0.9%		
	90	3.6E+01	0.8%	1.7E-02	1.2%	8.6E+00	0.7%	3.2E-01	0.6%
	120	3.4E+01	0.7%	2.0E-02	1.2%	8.3E+00	0.6%		
	150	3.4E+01	0.6%	2.1E-02	1.1%	8.3E+00	0.6%		
	180	3.5E+01	0.6%	2.2E-02	1.1%	8.3E+00	0.5%	5.5E-01	0.4%
頭頂部	0	3.5E+01	0.8%	1.3E-02	1.4%	8.5E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%
	30	3.5E+01	0.8%	1.4E-02	1.3%	8.5E+00	0.7%		
	60	3.5E+01	0.8%	1.5E-02	1.2%	8.5E+00	0.7%		
	90	3.5E+01	0.8%	1.6E-02	1.2%	8.5E+00	0.7%	3.1E-01	0.6%
	120	3.5E+01	0.8%	1.5E-02	1.2%	8.5E+00	0.7%		
	150	3.5E+01	0.8%	1.4E-02	1.3%	8.5E+00	0.7%		
	180	3.5E+01	0.8%	1.3E-02	1.4%	8.5E+00	0.7%	3.0E-01	0.6%

入射角度：天頂方向から見て時計回り

表 5 インジウム箔放射化実験（照射終了時刻における ^{115m}In 放射能，誤差は 1 σ 相当）

インジウム箔 取り付け位置	中性子フルエンス率 ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$)	計算 (Bq)	測定 (Bq)
窓なし側（回転せず）	5.0E+05	10.4 \pm 2%	8.7 \pm 5%
窓あり側（回転せず）	5.4E+05	11.0 \pm 2%	9.1 \pm 5%
等速回転	5.2E+05	10.5 \pm 2%	9.1 \pm 5%

試料：インジウム（1.0 \times 1.0 \times 0.006 cm） \times 4 枚（それぞれの質量は電子天秤で計測）

照射時間：18,000 秒

冷却時間：480 秒

測定時間：50,000 秒

検出器：PGT 社製 IGC-10200 型高純度 Ge 半導体検出器

データ収集・解析ソフトウェア：DppMCA Version 1.0.0.12 及び FitzPeaks Ver. 3.71

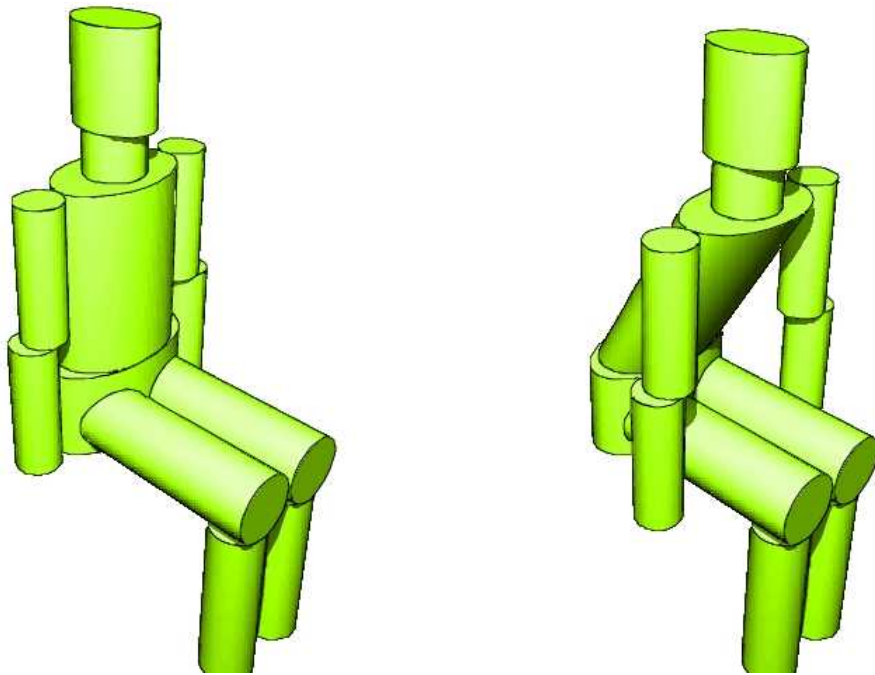


図1 ^{24}Na 及び ^{38}Cl からの γ 線による線量当量率（体表面）を計算するための BOMAB ファントム（左：座位，右：前屈座位）
 検出器位置は，股下から 20 cm（腰と胴体の接続部分から上に 5cm）

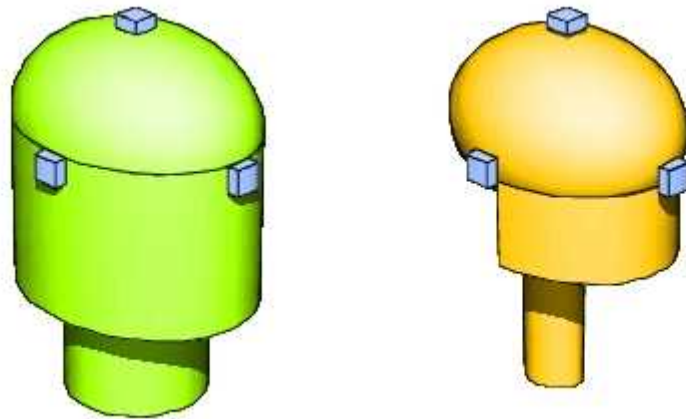


図2 毛髪の放射化計算のための計算モデル
 （右図は，左図の軟組織部分を透明にしたものであり，頭蓋骨や頸椎等が見える）

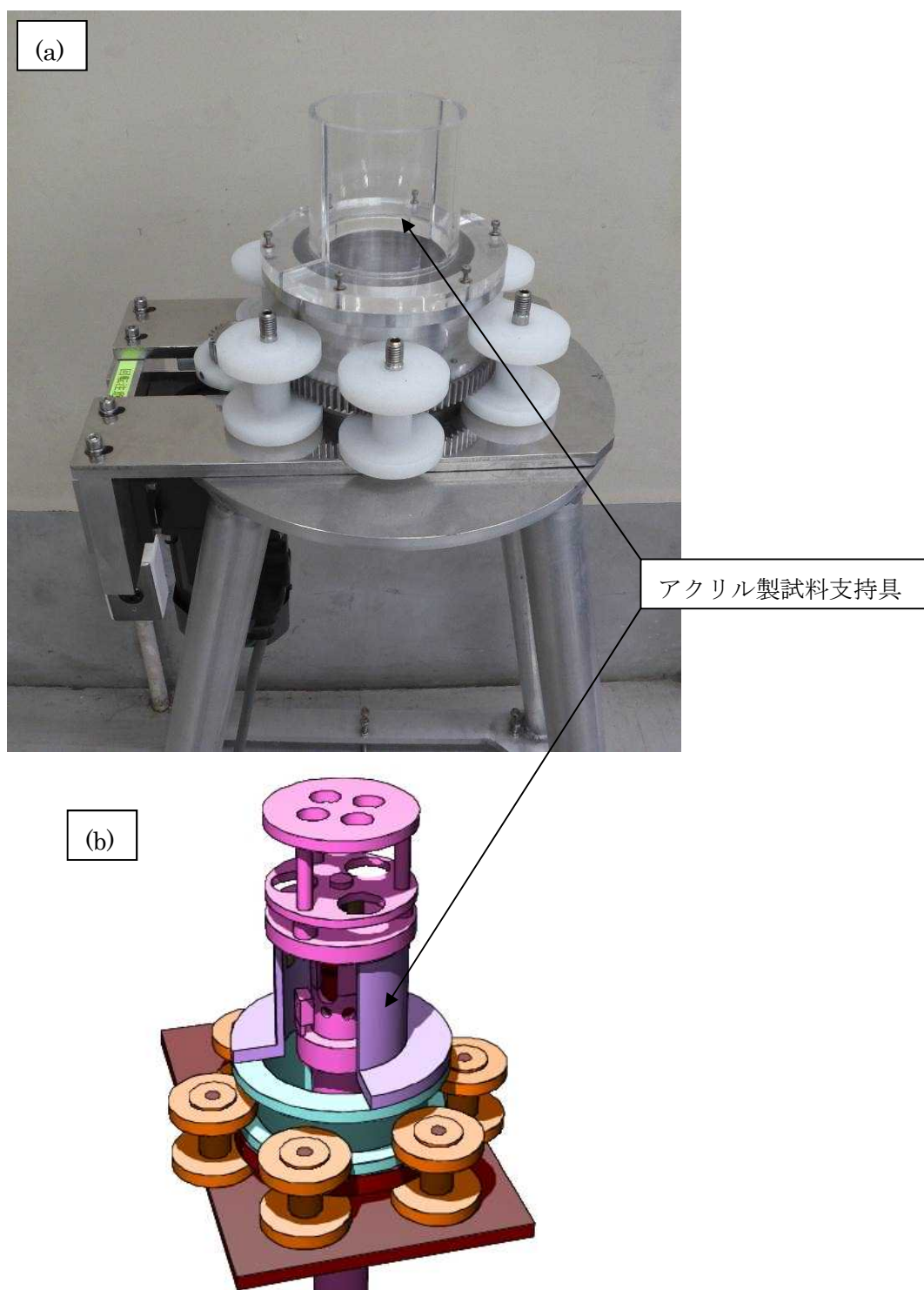


図3 製作した高線量中性子照射装置とその MCNP 計算モデル
(図(b)では、内部が見えるようにアクリル製試料指示具の一部を透明にしている)

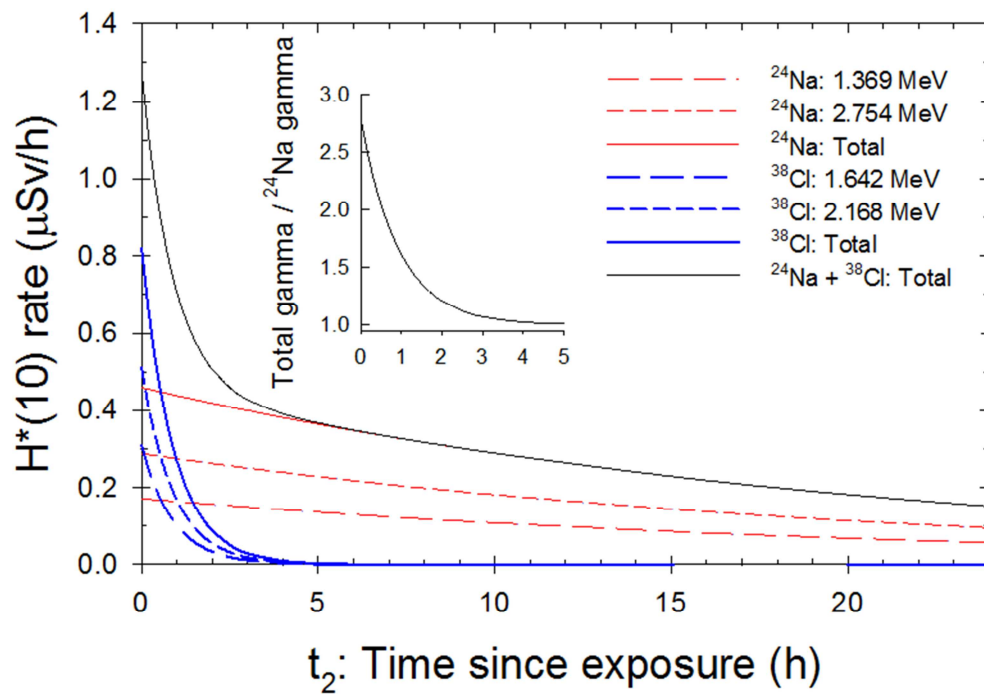
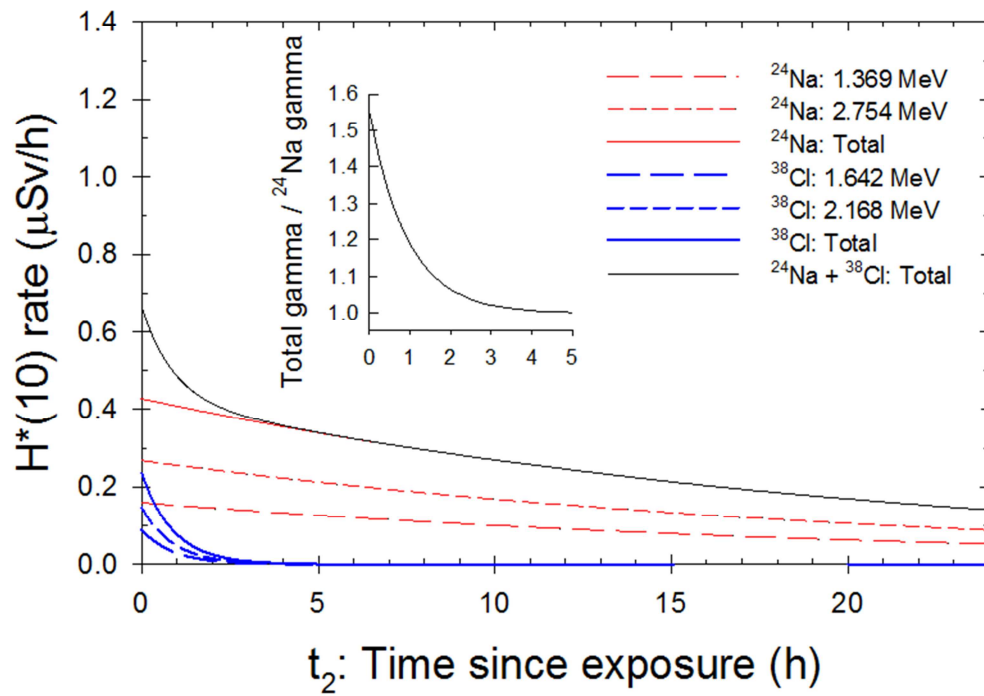


図4 水槽形ファントム実験における表面での γ 線 1 cm 線量当量率
 上図：中性子照射時間 180 分間（実験条件と同じ）

下図：瞬間的な中性子照射の場合（ただし、積算中性子フルエンスは実験条件と同じ）

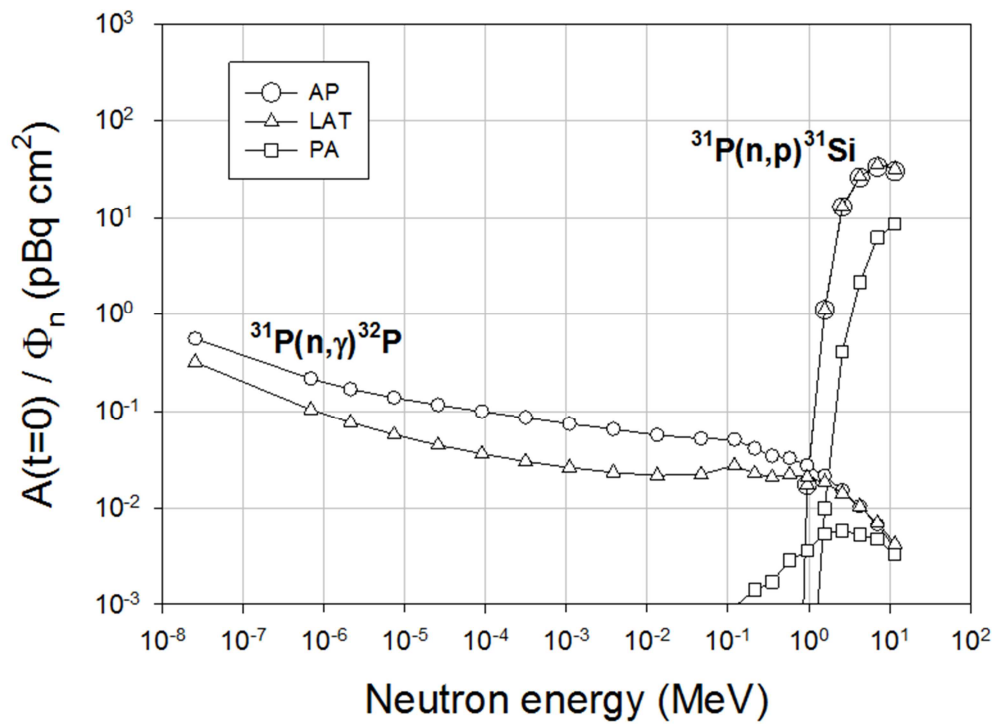
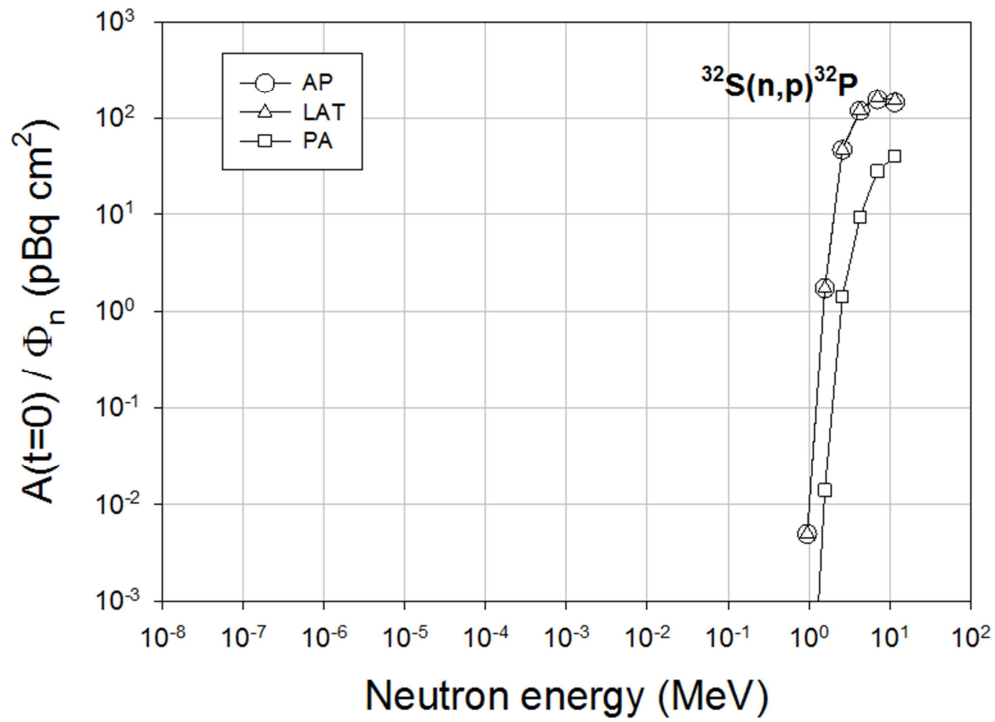


図5 単位中性子フルエンスあたりに毛髪1g中に生成される放射化生成物の放射能（曝露直後）

試料採取位置：前頭部

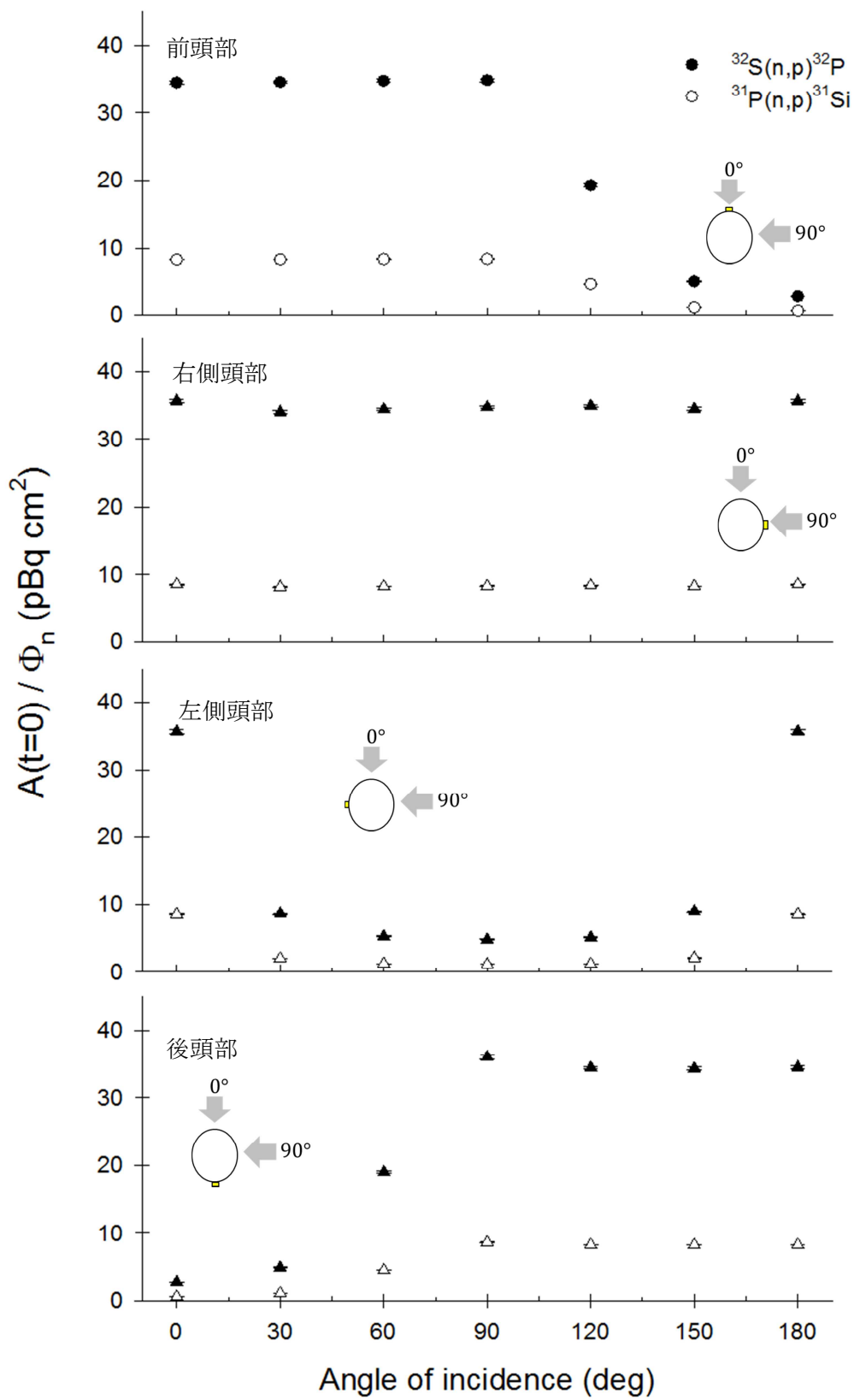


図 6 ²⁵²Cf からの単位中性子フルエンスあたりに毛髪 1 g 中に生成される放射化生成物の放射能 (曝露直後)

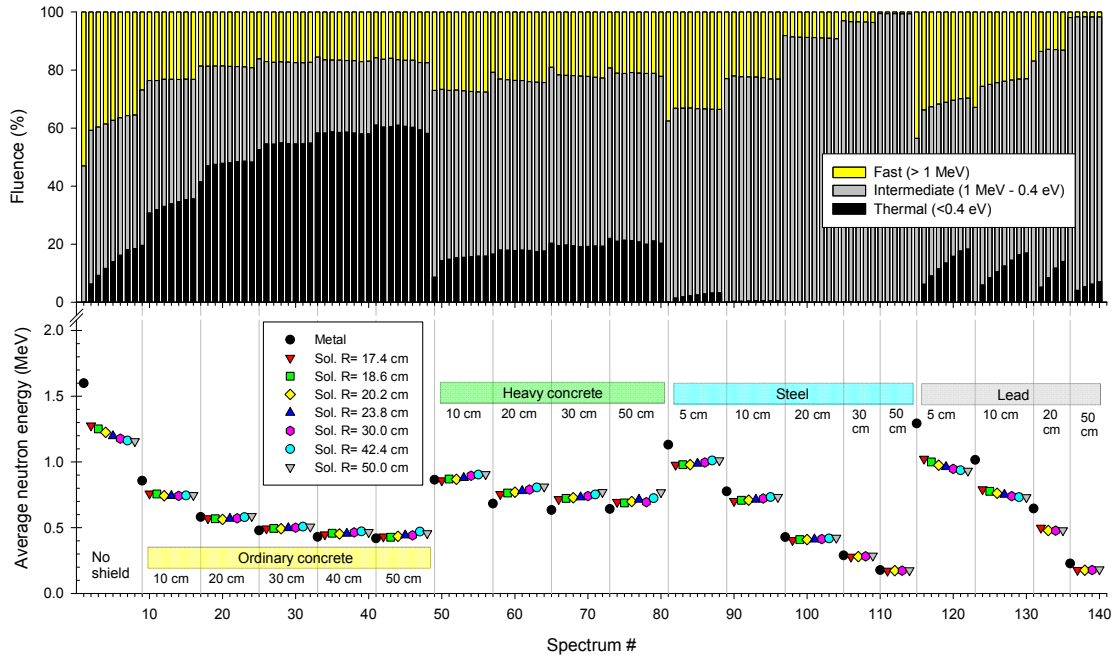


図7 プログラム RADAPAS 内蔵の中性子スペクトルの線質
 (上：エネルギー範囲別のフルエンス内訳，下：フルエンス平均エネルギー)

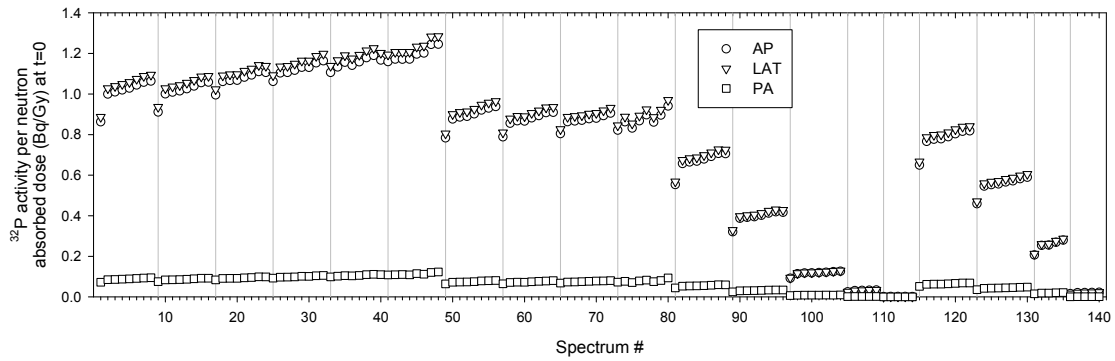


図8 RADAPAS 内蔵の様々な中性子スペクトルに対する
 中性子吸収線量 1 Gy 当りに毛髪 1 g 中に生成される ^{32}P 放射能 (曝露直後)

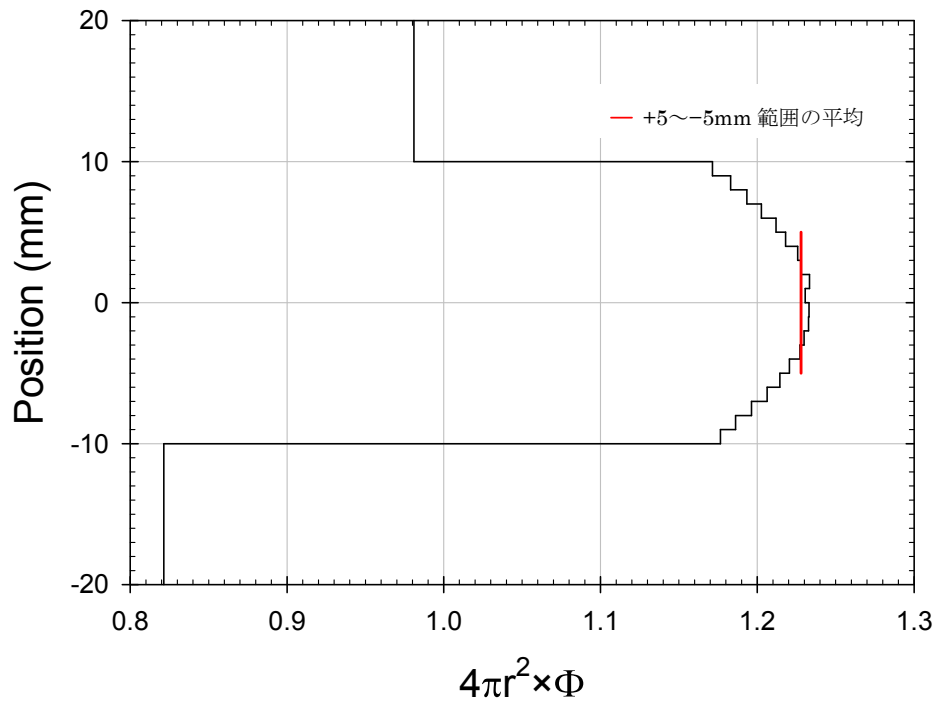


図9 試料指示具内面における中性子フルエンスの位置依存
 (縦軸 $z=0$ は線源実効中心に相当する。フルエンスは中性子 1 放出当たりに規格化)

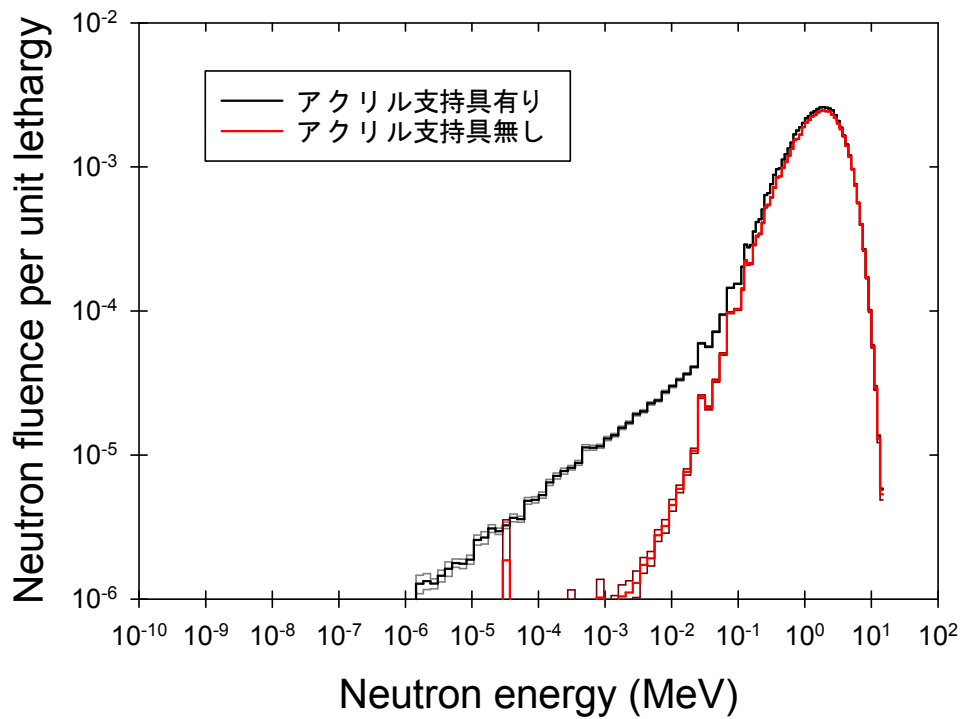


図10 試料指示具内面の試料取り付け領域 ($z = +5 \text{ mm} \sim -5 \text{ mm}$) における中性子スペクトル

アクチノイド核種等による内部被ばく線量評価に関する研究②

研究分担者 金ウンジュ (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)
栗原 治 (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)
研究協力者 大野 雅子 (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)

研究要旨

バイオアッセイ法において、生体試料中の不純物を除去する過程である前処理にかかる時間の短縮のために、鉄共沈法による前処理手法の検討を行い、その結果、尿試料 250ml 中の前処理にかかる時間を従来法にかかる時間 (約 28 時間) より約 15 時間まで短縮することができた。さらに、本手法による U, Pu 及び Am 成分に対する回収率はそれぞれ 75%, 85% 及び 80% まで担保されており、この結果から U, Pu/Am とともに既存の測定技術の典型的な検出限界値 1 mBq/liter (1 日測定) を担保できることを確認した。現在、本手法による妥当性を確認するために、国際相互比較試験に参加中である。また、アクチノイド核種の計測法として、全 α 放射能計測法以外に、 γ (X)線スペクトロメータを用いた計測法の検討を行うために、 ^{239}Pu 及び ^{241}Am が含まれている Pu 溶液を用いて予備試験を行い、 ^{239}Pu 溶液の波高スペクトルと ^{241}Am 単体の波高スペクトルの違い ^{239}Pu の特性 X 線成分が弁別可能であることを確認した。この内容においては、次年度に引き続き行う予定である。

A 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。本分担研究では、アクチノイド核種等による内部被ばく事故の際、生体試料 (主として排泄物) を用いたバイオアッセイ法による対象者の選別 (トリアージ) 及び線量評価手法の開発を行っている。バイオアッセイ法において、生体試料中の不純物を除去する過程である前処理にかかる時間の短縮のために、尿試料を用いて、着目している核種を選択的に分離する共沈法

による前処理法の検討を行っており、前年度では、リン酸塩またはシュウ酸塩を用いた共沈法により、前処理にかかる時間 (約 28 時間) を約 18 時間まで短縮したことについて報告を行った。しかしながら、リン酸塩またはシュウ酸塩を用いた共沈法では、尿中のウラン (U)、プルトニウム (Pu) / アメリシウム (Am) の回収率が、共沈剤の種類によっては、70% 以下である場合もあった。そのために、前年度に引く続き、前処理の迅速化及びアクチノイド核種 (U, Pu 及び Am) に対する回収率の向上化のためにより、鉄共沈剤を用いた前処理法の検討を起こった。また、アクチノイド核種の放射能計測は、全 α 放射能計測法による測定が一

般的であるが、 ^{239}Pu 成分と ^{241}Am 成分の弁別及び定量ができればこれらの核種を着目した場合、バイオアッセイ法において、核種分離過程にかかる時間を短縮することができることから ^{239}Pu 成分と ^{241}Am アクチニド核種を対象とした $\gamma(\text{X})$ スペクトロメータを用いた計測法の検討も行った。

B 研究方法

尿中の有機物を除去し、着目核種を選択的に分離するために、強酸化剤による湿式灰化法及び鉄共沈法[1]による分析手法を行った。図 1 は尿中のウラン (U) とプルトニウム (Pu) /アメリシウム (Am) の鉄共沈法による分析法のフローを示す。鉄共沈法による分析法では、まず、尿試料 (250ml) に着目した核種に応じたトレーサ (^{232}U , ^{242}Pu 及び ^{243}Am) 及び強硝酸剤 (HNO_3 , H_2O_2) を添加し、2-3 回繰り返す、蒸発乾固により有機物分解を行った。その後、乾固物は 8M HNO_3 で溶かして、酸化物分離用にアミド硫酸を加え、加熱溶解した。その後、その溶液に鉄キャリアー (Fe^{3+})、塩化アンモニウム (NH_4Cl)、アンモニア水 (NH_4OH) を加え、鉄共沈法により、鉄とともに着目核種を沈殿させた。次に、15 分間程度エイジングを行い、溶液中の沈殿物は遠心分離機 (3000 rpm, 15 分間) を用いて分離させた。分離後の沈殿物は 8M HNO_3 20ml で溶解して、その溶液に硝酸アルミニウム ($\text{Al}(\text{NO}_3)_3$)、アスコルビン酸及び亜硝酸ナトリウム (NaNO_2) を加えて価数調整を行い、核種分離用溶液試料を作成した。着目核種の分離は、抽出クロマトグラフィーレジンを用いて核種分離を行った。まず、前処理後の核種分離用溶液試料は、予め、8M HNO_3 で洗浄してある TEVA (50-100 μm) レジン及び DGA レジン

(50-100 μm) [2, 3] に流し、Pu 成分は TEVA レジンで吸着させて、U 及び Am 成分は DGA レジンで吸着させた。その後、TEVA レジンに吸着している Pu 成分は TEVA レジンに Pu 成分と一緒に吸着している Th 成分は 8M HCl 溶液を流すことで TEVA レジンから除去してから、8M HCl -0.1M NH_4I 溶離液を用いて Pu 成分を溶離させた。次に DGA レジンに吸着している U 成分は 0.2M HNO_3 溶離液で、Am 成分は 0.01M HCl 溶液で溶離した。「前処理」や「核種分離」後の試料溶液は、通常、ステンレスディスク板に着目核種を電着させた後、Si 半導体検出器 Si 半導体検出器 (ULTRA シリーズ BU-017-450-100, ORTEC 製, 直径 1 インチ, 検出効率 28%) によって真空条件下で 86400 秒間の測定を行い、尿中の着目核種の放射能を測定した。

アクチニド核種を対象とした $\gamma(\text{X})$ スペクトロメータを用いた計測法は、アクチニド核種から放出される特性 X 線や低エネルギー光子を効率よく測定する方法である。ここでは、類似した特性 X 線を放出する ^{239}Pu (13.6 keV, 17.1 keV, 20.3 keV) と ^{241}Am (13.9 keV, 17.5 keV, 21.0 keV)、これらの核種が混在している場合、 $\gamma(\text{X})$ スペクトロメータを用いた計測法により、 ^{239}Pu 成分と ^{241}Am 成分の弁別及び定量のための予備試験を行った。放医研が所有している Pu 溶液 (^{239}Pu : 96.6 wt%) には ^{239}Pu と ^{241}Am が混在しており (表 1 参照)、この Pu 溶液と単体の ^{241}Am の波高スペクトルの違いを用いて核種弁別及び定量のために、波高スペクトルの比較及び解析を行った。 $\gamma(\text{X})$ スペクトロメータには、低エネルギー領域に感度を持つカーボン窓の HPGe 検出器 (Type: GX3020, Canberra Inc.) を用いた。測定用試料は、0.5M HNO_3 (密度ほぼ 1g/ml)

で希釈した Pu 溶液 (74 Bq/5ml) 及び ²⁴¹Am 溶液 (200 Bq/5ml) を, PFA 製バイヤル (20 ml 用) に入れて, 波高スペクトルの測定を

行った。比較を行った。

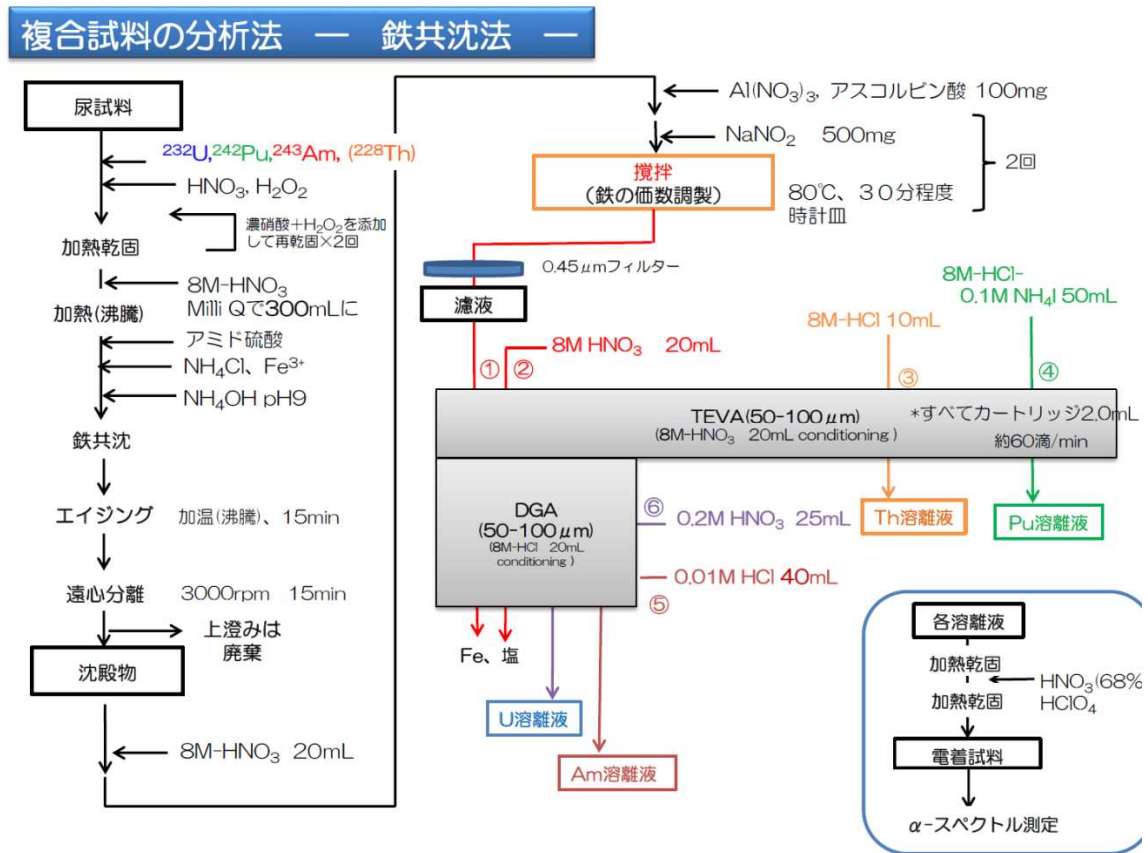


図 1 は尿中ウラン尿中ウラン (U) とプルトニウム (Pu) /アメリシウム (Am) の分析手順

表 1 Pu 溶液(JW-SP-10)の組成及び放射能

JW-SP-10算定 平成9年3月31日	重量%	1 g		平成26年11月6日 算定日現在放射能 Bq/g
		放射能 Bq/g	半減期 年	
239Pu	96.574	2.22E+09	24100	2.22E+09
240Pu	3.173	2.66E+08	6570	2.66E+08
241Pu	0.03	1.25E+09	14.4	5.35E+08
235U	0.093	74	703800000	7.40E+01
236U	0.009	222	234800000	2.22E+02
241Am	0.09	1.11E+08	432.2	1.08E+08
237Np	0.003	740	2140000	7.40E+02

C 研究結果

図 2 は XSTC-569-100 標準液(⁸⁵Rb, ⁸⁸Sr, ¹³³Cs, ¹³⁷Ba, ²³²Th, ²³⁸U)を添加した尿試料を図 1 に示す分析手法で行った分析結果を示す。これらの分析結果によれば, 本手法

(鉄共沈法)により, U 成分の回収率は 75%, Pu 成分は 85%, Am 成分は 80%であった。特に, 前年度に検討していたリン酸塩を用いた共沈法では U 成分の回収率は 70%以下, シュウ酸塩を用いた共沈法では Pu 成分の回収率が 50%で低かったが, 鉄共沈法による手法では, U, Pu/Am の 3 核種とも 75% の回収率を担保している。さらに, 前処理にかかる時間においても, 鉄共沈法により, 従来法の所要時間を約 12 時間, 前年度検討していたリン酸塩及びシュウ酸塩による共沈法より所要時間もさらに 3 時間以上, 短縮している。また, 本手法により評価した二つの尿試料のアクチノイド核種の定性及び

定量の分析結果によると、尿中には ^{238}U が含まれており、放射能は $64 \pm 7 \text{ Bq/sample}$ と評価された。この評価値は尿中に添加した標準液中の ^{238}U の放射能 (61.5 Bq/sample) とよく一致している。他の Pu/Am 成分においては、トレーサである ^{242}Pu 及び ^{243}Am だけが測定されており、Pu/Am が含まれていないことが確認できる。

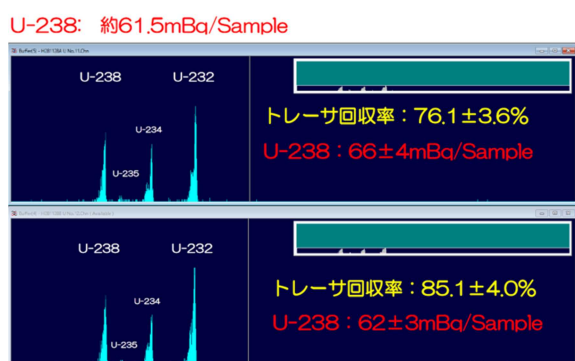
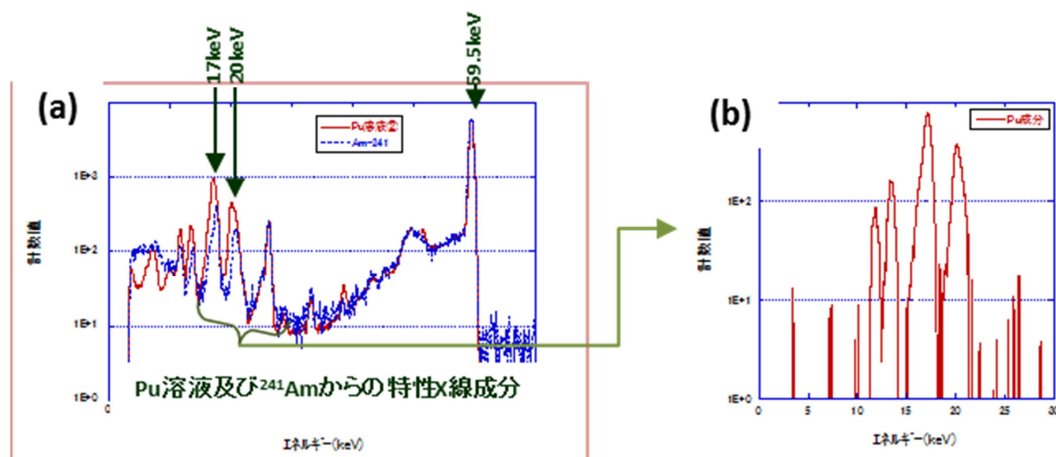


図 2 鉄共沈法による尿中の U の分析結果

図 3(a)は Pu 溶液 (^{239}Pu , ^{236}Pu , ^{241}Am , ^{237}Np が含まれている) の波高スペクトルと ^{241}Am 単体溶液の波高スペクトルを比較したもので、 ^{241}Am 単体溶液からの 59.5 keV のピーク領域の計数値と Pu 溶液に含まれている ^{241}Am 成分の 59.5 keV のピーク領域の計数値を合わせることで、Pu 溶液中の ^{239}Pu 成分からの特性 X 線成分が弁別できる。図 3(b)は波高スペクトルの違いを用いて、 ^{241}Am 成分を含む Pu 溶液の測定結果から ^{241}Am 単体核種からの特性 X 成分を除いた ^{239}Pu の特性 X 線成分を示す。この結果から ^{241}Am 単体での波高スペクトルの特徴を事前に評価しておくことにより γ (X) スペクトロメータを用いた計測法による ^{239}Pu からの特性 X 線成分を弁別することが可能であることが分かった。



(a) Pu 溶液の波高スペクトルと ^{241}Am 単体の波高スペクトルの 59.5 keV ピークの計数値が同一になるように規格化した図、(b) ^{239}Pu 溶液の測定結果から ^{241}Am 単体核種からの特性 X 成分を除いた場合の ^{239}Pu の特性 X 線成分評価例

図 3 HPGGe 検出器による Pu 溶液 ($^{239}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$) の及び ^{241}Am 溶液の波高スペクトル例

D 考察

バイオアッセイ法による内部被ばく線量評価を迅速化のために、鉄共沈法による前処理及び抽出クロマトグラフィーレジンをを用いた手法の検討を行った。その結果、湿式灰化法と共沈法と組み合わせた前処理法に

より、従来法で 40 時間ほどかかった時間を十数時間まで短縮するとともに U, Pu 及び Am 成分に対する回収率を 75%, 85%及び 80%まで担保していることが確認できた。これは、U, Pu/Am とともに既存の測定技術の典型的な検出限界値 1 mBq/liter (1 日測

定) (表 2 参照) を担保していることを指しており、本手法によるバイオアッセイ法がアクチニド核種に対する内部被ばく線量評価のための測定法として有効であることを意味する。表 3 は、前処理手法毎のアクチニド核種の回収率をまとめたもので、鉄共沈法が他の従来法やリン酸塩等による手法より有効であることが確認できる。

表 2 主な核種の検出限界(参考文献 4 から)

対象核種	生体試料	検出限界値
^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	尿	10 mBq/liter
^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	便(24h)	10 mBq
^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am	尿	1 mBq/liter
^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am	便(24h)	1 mBq

表 3 アクチニド核種の回収率

前処理法	U	Pu	Am
従来法	75%	80%	80%
リン酸共沈	75%		
シュウ酸共沈		50%	75%
リン酸共沈&有機物分解装置	65%	85%	85%
鉄共沈	75%	85%	80%

図 4 は、前年度に参加した国際相互比較試験結果を示しており、本試験では、従来法によるバイオアッセイ法による妥当性の確認を行った。この結果は尿中の ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U 成分の分析結果を示しており、従来法によって得られた評価値は、真の放射能より低めの評価値になっているが、評価値のバイアスは $\pm 25\%$ 以内であり、従来法に対する妥当性の確認ができた。今回は鉄共沈法による妥当性の確認のために、国際相互比較試験、仏国 CEA が主催する PROCORAD に参加中である。

本研究では、バイオアッセイ法により得られた測定用試料の計測法について、全 α

放射能計測法以外に γ (X)線スペクトロメトリ法による特性 X 線を計測する手法について検討している。その結果、 ^{239}Pu 及び ^{241}Am が含まれている Pu 溶液を用いた予備試験では、Pu 溶液の波高スペクトル及び ^{241}Am 単体の波高スペクトルの違い、例えば、Pu 溶液では ^{241}Am 単体の溶液試料に比べて特性 X 線のピークチャンネルが低エネルギー側にシフトし、ピーク半値幅も広がることから、また、Pu 溶液中の 17keV 及び 20keV の X 線成分の方は ^{241}Am 単体溶液での特性 X 線成分はより、波高スペクトル上の計数が約 50%高く、これは ^{239}Pu の ^{241}Am の特性 X 線の放出率から考えて合理的な結果である。即ち、予め、 ^{241}Am 単体での波高スペクトルの特徴を測定試料の形状毎に自己吸収等に応じて事前に評価しておくことにより、 γ (X)スペクトロメータを用いた計測法による ^{239}Pu からの特性 X 線分を弁別することが可能であることを示唆する。よって、 γ (X)線スペクトロメトリ法による計測法はアクチニド核種の計測法として有効であると考えられる。本研究は、次年度においても引き続き、計算シミュレーション (測定試料形状の最適化) による解析及び Pu 成分を含むアクチニド核種を用いた試験を行う予定である。

E 結論

アクチニド核種等による内部被ばく事故の際、バイオアッセイ法による内部被ばく線量評価を迅速に行うために、前処理手法の検討による分析時間の短縮化及び回収率の向上のための分析手法の検討を行った。そして、鉄共沈法による前処理及び抽出クロマトグラフィーレジンによる核種分離により、前年度に報告したリン酸塩及びシュウ酸塩による共沈法と比べて前処理にかか

る時間を3時間ほど短縮による前処理手法の迅速化を行った。同時に、U, Pu 及び Am 成分の回収率は75%, 85%及び80%まで担保して、U, Pu/Am ともに既存の測定技術の典型的な検出限界値1 mBq/liter (1日測定)を担保できることで、本手法がアクチニド核種に対する内部被ばく線量評価法に有効であることを確認した。また、アクチニド核種の計測法として、 γ (X)線スペクトロメータを用いた計測法の検討を行い、

^{239}Pu 及び ^{241}Am が含まれている Pu 溶液を用いて予備試験結果から、Pu 溶液の波高スペクトルと ^{241}Am 単体の波高スペクトルの違いを用いて、 ^{239}Pu からの特性X線分を弁別が可能であることを確認した。次年度においても引き続き、追加試験及び計算シミュレーションを行う予定である。

2016 - URANIUM IN URINE (activity)
LABORATORY N° 64

MATRIX : URINE
UNITY : Bq per sample

	SAMPLE	RESULTS & UNCERTAINTY	ASSIGNED VALUE & UNCERTAINTY	ROBUST MEAN	D.I. Detection limit	BIAS (%)	En	Z-score
234U	A	2.19E-01 ± 2.00E-02	2.42E-01 ± 1.08E-02	2.31E-01	6.00E-04	-10	-1.0	-1.6
235U	A	8.60E-03 ± 2.10E-03	1.11E-02 ± 4.90E-04	1.12E-02	6.00E-04	-23	-1.2	-1.3
238U	A	2.23E-01 ± 2.10E-02	2.40E-01 ± 1.07E-02	2.35E-01	4.00E-04	-7	-0.7	-1.1
234U	B	2.81E-02 ± 5.10E-03	3.19E-02 ± 1.42E-03	3.08E-02	7.00E-04	-12	-0.7	-1.5
235U	B	1.70E-03 ± 1.10E-03	1.52E-03 ± 7.00E-05	1.61E-03	9.00E-04	12	0.2	0.5
238U	B	2.58E-02 ± 4.80E-03	3.16E-02 ± 1.40E-03	3.11E-02	7.00E-04	-18	-1.2	-2.0
234U	C		1.90E-03 ± 2.46E-03	1.90E-03	0.00E+00	0	0.0	0.0
238U	C		1.05E-03 ± 1.38E-03	1.05E-03	0.00E+00	0	0.0	0.0

BIASES are calculated from the assigned value. Without assigned value, biases are calculated from the ROBUST mean.

Zscore
 In agreement
 Discrepant
 Questionnable

En
 In agreement
 Discrepant

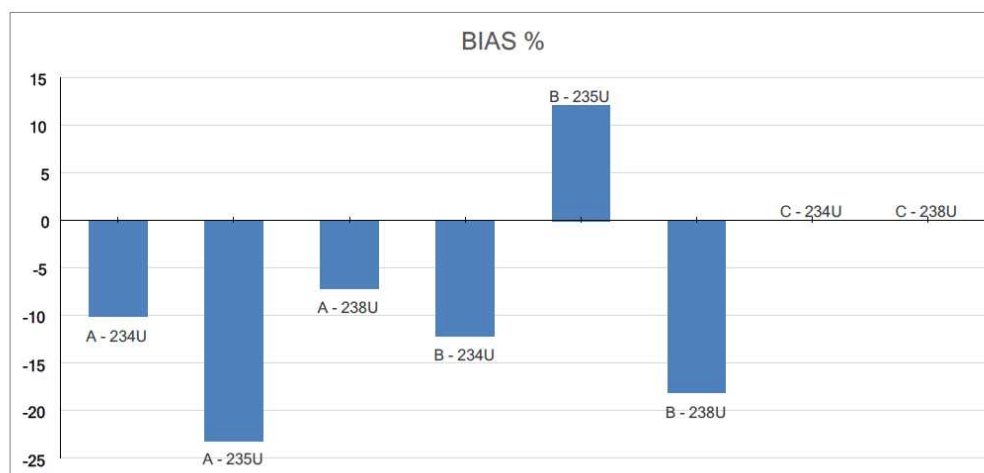


図4 尿中の ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U 成分の分析結果

参考文献

- [1] J. Lehto and X. Hou. Chemistry and analyses of radionuclides. WILEY-VCH (2011).
- [2] S. L. Maxell and D. J. Fauth. Rapid analysis of emergency urine and water samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 275, 497-502 (2008).
- [3] E. P. Horwitz, R. Chiariza, M. L. Dietz, H. Diamond, D. M. Nelson. Separation and preconcentration of actinides from acid media by extraction chromatography. *Anal. Chem. Acta.*, 281, 361-372 (1993).
- [4] ICRP. Individual monitoring for internal exposure of workers Replacement of ICRP Publication 54. ICRP Publication 78. *Ann. ICRP* 27(3-4) (1997).
- [5] C. Li, A. Ansari, C. Bartizel, P. Battisti, D. Frank, U. Gerstmann, I. Giardina, C. Guichet, D. Hammond, M. Hartmann, R. L. Jones, E. Kim, E. Ko, R. Morhard, D. Quayle and B. Sadi. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of a recent exercise. *Radiat. Prot. Dosim* 171(3): 351-357 (2016).
- [6] C. Li, C. Bartizel, P. Battisti, A. Böttger, C. Bouvier, A. Capote-Cuellar, Z. Carr, D. Hammond, M. Hartmann, T.

Heikkinen, R. L. Jones, E. Kim, R. Ko, R. Koga, B. Kukhta, L. Mitchell, R. Morhard, F. Paquet, D. Quayle, P. Rulik, B. Sadi, A. Sergei, I. Sierra, W. Oliveira Sousa and G. Szabó. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of second exercise. *Radiat. Prot. Dosim* 174 (4): 449-456 (2017).

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

- [1] C. Li, C. Bartizel, P. Battisti, A. Böttger, C. Bouvier, A. Capote-Cuellar, Z. Carr, D. Hammond, M. Hartmann, T. Heikkinen, R. L. Jones, E. Kim, R. Ko, R. Koga, B. Kukhta, L. Mitchell, R. Morhard, F. Paquet, D. Quayle, P. Rulik, B. Sadi, A. Sergei, I. Sierra, W. Oliveira Sousa and G. Szabó. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of second exercise. *Radiat. Prot. Dosim* 174 (4): 449-456 (2017).

H. 知的財産権の出願・登録情報 (予定を含む)

労災疾病臨床研究事業費補助金
(総括・分担) 研究報告書

アクチノイド核種等による内部被ばく線量評価に関する研究②

研究分担者 藤田 博喜 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)
永岡 美佳 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)

研究要旨

高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備するために、①誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) における検出下限値の算出、②放射性ストロンチウム迅速分析法の検討を行った。その結果、ICP-MS 測定における検出下限値としては、ストロンチウム - 90 では約 0.1 Bq/L、ウラン - 238 では約 0.03 mBq/L、アメリカシウム - 241 では約 16 mBq/L であった。迅速放射性ストロンチウムの分析法では、150 及び 200 mL の尿を供試量として検討し、2 日程度で分析を終えられることが分かった。この分析法におけるストロンチウムの回収率は、80 %程度であった

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。本研究は、照射事故の代表例であるウラン加工施設での臨界事故あるいは汚染 (放出) 事故の代表例である東京電力福島第一原子力発電所事故の際に、対象者の選別 (トリアージ) 及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組まざるを得なかった状況を鑑みると、緊急被ばく医療対応の迅速性と実行性の向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。

上記の目的を達成するために、研究分担者は、線量を評価する手法としての迅速アクチノイド核種等の分析法の開発を目的とし

た。

B. 研究方法

迅速に尿中アクチノイド核種等を分析するために、①ICP-MS における検出下限値の算出、②迅速放射性ストロンチウム分析法の検討を行った。

(1) ICP-MS における検出下限値の算出

放射性核種の放射能を定量するにあたり、放射線を計測する方法と質量を測定する方法とがある。一般的には放射線を計測する方法が多く用いられているが、長半減期核種の場合には、質量分析法を使用する方が低い定量下限値でかつ短時間で測定を終えることができる。このため、質量分析装置の発展に伴い、その適用例が多くなっている。そこで、原子力機構では、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS、Agilent

Technologies 社製 8800) におけるストロンチウム-90、ウラン-238 及びアメリシウム-241 放射能濃度の検出下限値 (DL) を把握するために、それぞれの標準溶液の検量線を作成した。また、本 ICP-MS はトリプル四重極構成であり、第 1 の四重極と第 2 の

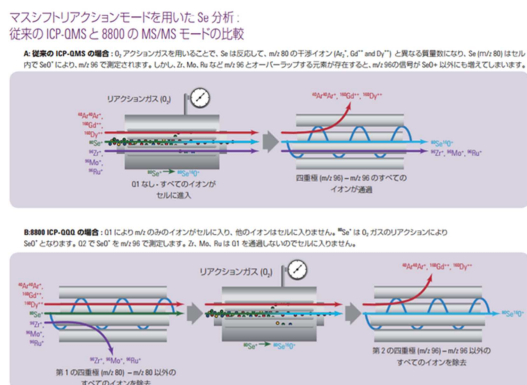


図 1 ICP-MS の測定原理の概略図

アジレント・テクノロジー社カタログより抜粋

四重極の間にリアクションガスを導入できる (図 1) ため、このリアクションガスとして、水素 (7.0 mL/分)、ヘリウム (4.3 mL/分)、酸素 (30%)、亜酸化窒素 (30%) の 4 種類を選択し、これらによるストロンチウム-90、ウラン-238 及びアメリシウム-241 放射能濃度の検量線の変化を観測した。さらに、通常のシングル四重極による測定も行った。

(2) 迅速放射性ストロンチウム分析法の検討

文献調査結果から、牛乳の分析法 (Rapid Simultaneous Determination of ⁸⁹Sr and ⁹⁰Sr in Milk: a Procedure Using Cerenkov and Scintillation Counting (IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No. 27)) を参考に、この方法を尿分析に適用し、尿中ストロンチウムの分析回収率を求めた。

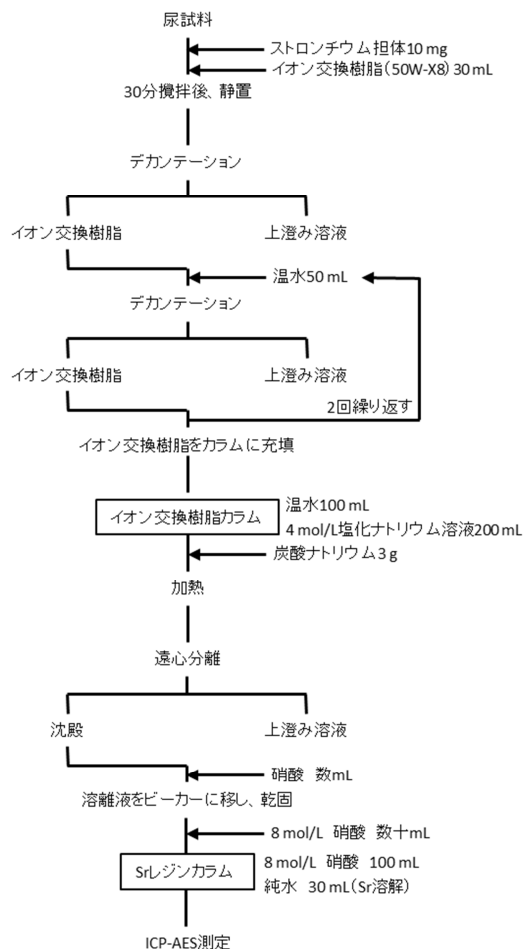


図 2 迅速放射性ストロンチウム分析法のフロー図

尿試料 150 mL 及び 200 mL をそれぞれビーカーに採取し、ストロンチウム担体を一定量 (10 mg Sr) 加え、イオン交換樹脂 (Dowex 50W-X8、100-200 mesh、Na 型) を加えて 30 分以上スターラーを使用して攪拌した後に静置して、イオン交換樹脂を沈降させた。上澄み液を廃棄した後に、温水でイオン交換樹脂を洗浄した。洗浄したイオン交換樹脂をカラムに充填し、4 mol/L 塩化ナトリウム溶液でストロンチウムを溶解し、炭酸ナトリウムを加えて炭酸ストロンチウムを生成した。炭酸塩を硝酸に溶解してビーカーに移して乾固し、乾固物を 8

mol/L 硝酸に溶解した。その溶液を抽出クロマトグラフィーレジン (Eichrom 社製 Sr レジン) に通液し、ストロンチウムを精製した。精製したストロンチウムの回収率を誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-AES、パーキンエルマー社製 OPTIMA8300)により求めた。この分析フロー図を図 2 に示す。

C. 研究結果

(1) ICP-MS における検出下限値の算出

ストロンチウム-90 放射能濃度の検量線から算出した検出下限値及びバックグラウンド相当濃度 (BEC) を表 1 に示す。表中の項目で「なし/MSMS」は、リアクションガスを導入しないで、トリプル四重極として測定したことを意味している。ここでは

項目	リアクションガス/測定モード (SMS あるいは MSMS)					
	なし/ MSMS	H ₂ / MSMS	He/ MSMS	N ₂ O/ MSMS	O ₂ / MSMS	なし/ SMS
DL (mBq/mL)	0.79	0.30	0.66	7.1	3.5	0.85
BEC (mBq/mL)	11	9.2	6.2	11	10	12

M/Z=90 を測定した。また、それぞれのガス導入時に分子イオンの生成量を把握するために、H₂ 導入時には M/Z=91、He 導入時には M/Z=94、O₂ 導入時には M/Z=106 を測定したが、O₂ 導入時以外では分子イオンの生成は確認されなかった。

最も DL が良かったのは H₂/MSMS であった。この時の供試量を 500 mL、回収率を 60 %、最終溶液を 100 mL とすると、1.0×10² mBq/L となった。最も BEC が低かったのは He/MSMS であった。この時の供試量等を上記と同じ条件で計算すると、2.0×10³ mBq/L となった。

ウラン-238 放射能濃度の検量線から算出

した DL 及び BEC を表 2 に示す。ここでは、M/Z=238 を測定した。また、H₂ 導入時には M/Z=239、He 導入時には M/Z=242、O₂ 導入時には M/Z=254 を測定したが、He 導入時以外で分析イオンの生成が確認された。DL は 0 ppt であり、最も低い BEC が得られたのは O₂/MSMS であった。この時の供試量を 500 mL、回収率を 60 %、最終溶液を 100 mL とすると、0.028 mBq/L となった。

項目	リアクションガス/測定モード (SMS あるいは MSMS)					
	なし/ MSMS	H ₂ / MSMS	He/ MSMS	N ₂ O/ MSMS	O ₂ / MSMS	なし/ SMS
DL (ppt)	0.30	0	0.66	0	0	0.22
BEC (ppt)	29	29	28	40	6.8	29

アメリカシウム-241 放射能濃度の検量線から算出した DL 及び BEC を表 3 に示す。ここでは、M/Z=241 を測定した。また、H₂ 導入時には M/Z=242、He 導入時には M/Z=245、O₂ 導入時には M/Z=257 を測定したが、O₂ 導入時以外では分子イオンの生成は確認されなかった。

項目	リアクションガス/測定モード (SMS あるいは MSMS)					
	なし/ MSMS	H ₂ / MSMS	He/ MSMS	N ₂ O/ MSMS	O ₂ / MSMS	なし/ SMS
DL (mBq/mL)	0	1.4	0	7.8	8.1	0.37
BEC (mBq/mL)	0.049	0.30	0	3.7	0.31	0.25

最も低い DL 及び BEC は、0 mBq/mL であった。しかし、この数値は現実的ではないため、数値の与えられている最も低い BEC であるなし/MSMS で評価した。この時の供試量を 500 mL、回収率を 60 %、最終溶液を 100 mL とすると、16 mBq/L となった。

(2)放射性ストロンチウム迅速分析法の検討
分析フローに従って尿中ストロンチウム分析を行い、その回収率を測定した。

200 mL の尿試料にそれぞれストロンチウム担体及びイオン交換樹脂を加えてスターラーで攪拌し、そのイオン交換樹脂をカラムに充填して、洗浄及び溶離を行うまでに工程で大きな問題は特になかった。その後、溶離液に炭酸ナトリウムを加えて加熱して沈殿を熟成し、遠心分離により沈殿と上澄み液を分けて、沈殿のみを回収した。この遠心分離後にデカンテーションで上澄み液を取り除く際に、沈殿の混入が考えられたので、上澄み液が残った状態でその後の分析操作に移った。沈殿を硝酸で溶解し、Sr レジンに通液して洗浄、その後に溶離液を通液してストロンチウムを回収した。この Sr レジンに通液する段階で、塩の析出が見られ、長時間を要した。溶離したストロンチウム溶液に硝酸を加えて蒸発乾固した後に、0.5 mol/L の硝酸液で溶解して測定溶液として ICP-AES でストロンチウムを測定したところ、その回収率は 78 %であった。150 mL の尿試料に対しても上記と同様に分析し、そのストロンチウム回収率を測定した。ただし、遠心分離の段階で、上澄み液の除去を十分に行った。その結果、Sr レジンカラムへの通液段階で塩の析出は見られず、先の通液時間の 5 分の 1 程度で終了した。この試料におけるストロンチウムの回収率は、82 %であった。この分析フローは液体シンチレーションカウンターによる放射能測定を想定している。しかし、我々は ICP-MS での測定を検討しており、この測定時に妨害となる元素の測定試料への混入割合をまだ測定できていない。これについては、平成 29 年度に検討する予定である。

D. 考察

ICP-MS におけるストロンチウム-90、ウラン-238 及びアメリカシウム-241 のそれぞれの検量線測定結果から各核種の検出下限値を算出した。まず、ストロンチウム-90 に関しては、リアクションガスが H₂ の場合に、最も良い検出下限値となった。しかし、一般的にはリアクションガスとして O₂ ガスを使用されており、測定時に妨害となるジルコニウム-90 の除去をしながら測定をしている。このことから、単純な検出下限値の比較だけではなく、妨害元素の除去を最大限行えるような測定条件の検討が今後必要であると考えられる。また、放射線測定による検出下限値と比較して、ICP-MS 測定による検出下限値は悪く、迅速性を必要とされない場合については、放射線測定を選択する方が、より低いレベルのストロンチウム-90 を含有する尿試料の定量を行える。

次に、ウラン-238 に関しては、O₂ ガスをリアクションガスとして使用することによって、最も良い測定条件が得られた。しかし、ウラン-238 に関しては、測定時に妨害となる元素が存在しないため、リアクションガスを使用しないで、通常モードでの測定で十分であると考えられる。また、放射線測定による U-238 と比較して、ICP-MS による測定の方が検出下限値は良く、短時間の測定で結果を得ることができる。よって、ウラン-238 の測定においては、ICP-MS の方が優れていると考えられる。ただし、ウラン-234 及び-235 を測定する場合には、その必要とされる検出下限値を勘案して、測定方法を選択する必要があると考える。

アメリカシウム-241 に関しては、リアクシ

オンガスによる検出下限値等に大きな差はなかった。その検出下限値は放射線測定によるものよりも悪く、迅速性を要求されていない場合には、放射線測定の方が極低濃度のアメリカシウム-241を定量できるものと考えられる。

最後に、尿中放射性ストロンチウム分析法の迅速化については、尿試料 200 mL まで適用可能であることが分かった。しかし、測定時に妨害となる元素の除去率や供試量の拡大については、更に検討が必要である。これについては、平成 29 年度に検討を継続する予定である。

E. 結論

今年度の研究により、リアクションガスを使用した ICP-MS のストロンチウム-90、ウラン-238 及びアメリカシウム-241 の検出下限値を把握することができた。また、尿中放射性ストロンチウム分析法の迅速化に係る基礎検討を実施した。これらの検討結

果により、1) ICP-MS 測定時の妨害元素のリアクションガス使用による除去率、2) 放射性ストロンチウム分析法の迅速化における測定妨害元素の分析による除去率、に係る検討の必要なことが明らかになったため、これについては、平成 29 年度に実施予定である。また、放射性ストロンチウム分析法の迅速化に関しては、標準試料等へ本方法を適用し、その妥当性を評価する必要がある。これについても、平成 29 年度に実施予定である。

F. 健康危険情報

なし

G. 研究発表

なし

H. 知的財産権の出願・登録情報（予定を含む）

なし

労災疾病臨床研究事業費補助金
(総括・分担) 研究報告書

皮膚汚染時における線量評価に関する研究

研究分担者 辻村 憲雄 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)
矢島 千秋 (量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所)
研究協力者 吉田 忠義 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)
星 勝也 (日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所)

研究要旨

身体表面の汚染の測定から放射能(表面密度)を算出し、さらにそれを線量率に換算する手順は、単純ではない場合がある。そこで、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている電離箱式線量当量率サーベイメータ(日立メディカル製 ICS-321 及び応用技研製 AE-133B)の指示値と皮膚線量率の関係を実験と計算によって評価した。汚染サイズに対する計数率-線量率換算係数の依存の程度を明らかにするとともに、その適用例を示した。また、これまでに国内外で使用されてきた表面汚染密度-皮膚線量率換算係数を一覧表として整理し、出典による違いについて分析するとともに、計算コード VARSKIN4 による換算係数との相違が代表的な核種について 50%以内であることを確認した。

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。ここでは、汚染(放出)事故の代表例たる原子力施設での事例に着目し、対象者の選別(トリアージ)及び線量評価について検討し、緊急被ばく医療対応の迅速性と実行性の向上を図る。

B. 研究方法

(1) 電離箱式線量当量率サーベイメータを用いる皮膚線量評価

平成 27 年度総括及び分担研究報告書において、国内で一般に使用されている直径 50 mm の端窓 GM 計数管式表面汚染サーベイメータについて、その指示が汚染サイズによって変化することを示し、その大きさに応じた線量率への換算手順を明らかにした。ただし、端窓 GM 計数管式表面汚染サーベイメータの場合、測定レンジの上限(100 kcpm)は、 β 線の線量率にしてせいぜい 10 mGy/h に相当する程度であるため、それを超えるようなレベルの汚染事象には対応できない。そこで、今年度は、測定可能レンジをより高線量率域に拡大することを目的に、表面汚染用のサーベイメータではなく電離箱式の線量当量率サーベイメータ

タを使用する皮膚汚染線量評価法[1]に取り組む。

今回、研究で使用する電離箱式サーベイメータは、

- ・アロカ（現在、日立メディカル）株式会社製 ICS-321

- ・応用技研株式会社製 AE-133B

の二種類であり、両者ともに放射線管理の現場で広く使用されている。それらの諸元を表 1 に示す。ICS-321 は、 γ 線の 1 cm 線量当量（周辺線量当量）率の測定を主たる目的に設計されたものであり、電離箱前面のカバーを取り外すことで β 線も検知可能であるが、それは 70 μm 線量当量（方向性線量当量）率にも表面汚染密度の測定用にも元来設計されているわけではない。一方、AE-133B は、 β 線及び軟 X 線による 70 μm 線量当量率の測定に特化した設計であり、東京電力福島第一原子力発電所において β 線 70 μm 線量当量率の測定に使用されている。

実験は、前年度の研究と同様に、サーベイメータの指示値（Sv/h）と表面密度（Bq/cm²）の関係を汚染サイズ別に調べることを基本とする。ここでは、放射能が既知の ⁹⁰Sr-⁹⁰Y 及び ¹³⁷Cs の点線源（直径 5 mm の放射性物質を薄い膜で挟んだもの）を入射窓から距離 5 mm に固定したまま入射窓に平行に移動させることにより直径の異なる汚染を模擬する。ここで、選択した核種は、福島第一原子力発電所事故における主たる β 線放射核種（初期は ¹³²Te-¹³²I、続いて ¹³¹I）にそれぞれ似たエネルギーを持つ。電離箱サーベイメータの測定信号はデジタルチャートレコーダーで記録する。図 1 に実験配置等を示す。

表面密度から皮膚線量率（70 μm 線量当量率）に換算する係数については、前年度の研究手順と同様に、点積分核法によって任意形状の汚染による皮膚線量を計算するコード VARSKIN 4 [2]を用いて計算する。

(2) 表面密度-皮膚線量率換算係数の調査

現在、わが国では、測定に基づき評価された表面密度から皮膚線量率に換算する際に、公益財団法人原子力安全技術センター発行の「被ばく線量の測定・評価マニュアル」[3]に図又は表として再録された龍福ら[4]又は ICRU Report 57 [5]の係数が利用されている。また、これらのほかに、比較的入手しやすい情報としては、Kocher らの論文[6]、IAEA の緊急時対応手順書 [7]（又はその翻訳版[8]）、さらに Delacroix らのハンドブック[9]がある。

しかしながら、これらの異なる出典からの換算係数は必ずしも同じ値ではなく、いずれの出典に準拠したかによって線量の値が変わるという現状は、評価手順を標準化する上で好ましくない。そこで、これら異なる出典の換算係数を同じ単位で一覧表としてとりまとめ、VARSKIN4 による計算値を比較基準とした場合の相違を明らかにする。

（倫理面への配慮）

本研究は、特定個人を対象とするものではないので人権擁護上の配慮等を特に必要としない。

C. 研究結果

(1) 電離箱式線量当量率サーベイメータを用いる皮膚線量評価

図 2 に、⁹⁰Sr-⁹⁰Y 及び ¹³⁷Cs について、汚染面積を変化させた時の ICS-321 型及び

AE-133B 型電離箱式線量当量率サーベイメータの指示値の変化を示す。ここで表面密度は 1 Bq/cm^2 に固定した。汚染面積に対する指示値変化の傾向は、二種類のサーベイメータともに同様であった。それぞれの窓面積（約 44 及び約 95 cm^2 ）を超える面積の汚染に対してほぼ一定になること、窓面積よりも小さな汚染については面積に比例することが確認された。図 3 に、VARSKIN で計算した汚染面積と線量率の関係を示す。図 2 と同様に、ここでは表面密度を 1 Bq/cm^2 にした。図から、線量率は、吸収線量を計算するエリア (1 cm^2) よりも大きな汚染でほぼ一定になること、小さな汚染で面積に比例することが確認された。

図 4 に、皮膚線量率 1 mGy/h に相当する電離箱式サーベイメータの指示値（図 2 と図 3 の縦軸の比に相当する）を汚染面積の関数として表したものを示す。元来、 β 線の方向性線量当量率測定用に設計された AE-133B の場合、皮膚線量率当たりの指示値は、核種間 (^{90}Sr – ^{90}Y と ^{137}Cs) で大きな差はなく、入射窓面積（約 95 cm^2 ）を超える広さの汚染の場合、ほぼ 1 であった。このことは、本サーベイメータの場合、ある特定の汚染状況下においては、指示値をそのまま表面汚染による皮膚線量率と見なすことができることを表している。一方、ICS-321 の場合、カーブの増減の傾向は、AE-133B と同じであるが、広い汚染であっても指示値/線量率は約 0.3 であった。

(2) 表面密度—皮膚線量率換算係数の調査

換算係数を比較した一覧表を**附録表**に示す。単位は、表面密度 (Bq/cm^2) 当たりの

皮膚線量率 ($\mu\text{Gy/h}$) である。また、換算係数間の値の相違については、VARSKIN4 で計算した β 線の換算係数を基準としたときの百分率相対偏差 (%) で示した。

D. 考察

(1) 表面汚染及び線量当量率サーベイメータによる皮膚汚染時の線量評価

一般的な GM 計数管式表面汚染サーベイメータ及び電離箱式線量当量率サーベイメータについて、体表面の汚染を測定する場合の汚染密度と指示値の関係、さらに指示値と線量率の関係を明らかにした。それぞれのサーベイメータで測定可能な線量率範囲は、図 5 のとおりである。汚染事故時の初期対応にあつては、本結果に基づき汚染の程度に応じて適切なサーベイメータを選択する必要がある。

本研究の結果をもとに提案された皮膚汚染事故時の線量評価手順の例（日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所で取入れ検討中）を図 6 に示す。端窓 GM 計数管式サーベイメータから電離箱式線量当量率サーベイメータへ切り替えが具体的な数値レベルと共に示されている。

(2) 表面密度—皮膚線量率換算係数の相違

調査対象とした換算係数は、点積分核法に基づくもの（文献[4], [6]）、同じ方法に基づくが無限媒質中における後方散乱補正を含むもの（文献[9]）、モンテカルロ計算に基づくもの（文献[5]）等様々である。

VARSKIN4 による β 線皮膚線量率換算係数は、モンテカルロ計算に基づく換算係数（ICRU レポート）の値にほぼ一致した。VARSKIN4 と同様に点積分核法に基づくが後方散乱補正を含まない初期（1970～

1980年代)の換算係数は、やや大きめの換算係数を与えた。ただし、これらの間の相違は、換算係数の値が極端に小さい一部の核種を除き、最大でも約50%であった。これは、表面汚染の測定の際の不確かさ(汚染のサイズや自己吸収)や汚染の付着時間といった線量評価における潜在的な不確かさ要因に比べれば比較的小さい。とはいえ、どの換算係数を使ったのかを明らかにしておくことは、後日の記録の検証等で重要である。

なお、IAEAがとりまとめた手順書[7]では、収録された換算係数の出典を文献[10]としているが、当該文献中に換算係数は記載されていない。係数の出典は、換算係数の値がほぼ一致すること、かつ出版時期がほぼ同じであることから、文献[9](換算係数はVARSKIN 2に基づく計算値)ではないかと推定される。

E. 結論

体表面の汚染の測定から放射能(表面密度)を算出し、さらにそれを線量率に換算する手順は、単純ではない場合がある。そこで、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている電離箱式線量当量率サーベイメータ(日立メディカル製 ICS-321 及び応用技研製 AE-133B)の指示値と皮膚線量率の関係を実験と計算によって評価した。汚染サイズに対する計数率-線量率換算係数の依存の程度を明らかにするとともに、その適用例を示した。また、これまでに国内外で使用されてきた表面汚染密度-皮膚線量率換算係数を一覧表として整理し、出典による違いについて分析するとともに、計算コード

VARSKIN4による換算係数との相違が代表的な核種について50%以内であることを確認した。

文献

- [1] 須賀新一, 備後一義, 梶本与一, 電離箱型およびGM計数管型サーベイメータの校正(II)-皮膚汚染の β 線線量率測定のための試験-, 保健物理, **14**, 1-10, (1979).
- [2] D. M. Hamby, C. J. Lodwick, T. S. Palmer, S. R. Reese, and K.A. Higley, VARSKIN 4: A Computer Code for Skin Contamination Dosimetry, NUREG/CR-6918 Rev. 1, (2011).
- [3] 被ばく線量の測定・評価マニュアル, 公益財団法人原子力安全技術センター, (2000).
- [4] 龍福廣, 中戸喜寄, 備後一義, 立田初己 福田整司, 南賢太郎, 点積分核法による β 線皮膚線量の評価, JAERI-M 7354, 日本原子力研究所, (1977).
- [5] International Commission on Radiation Units and Measurements, Dosimetry for External Beta Rays, ICRU Report 57, (1997); 元データの出典は, W. G. Cross, N. O. Freedman and P. Y. Yong, Beta Ray Dose Distributions from Skin Contamination, *Radiat. Prot. Dosim.* **40**(3), 149-168 (1992).
- [6] D. C. Kocher and K. F. Eckerman, Electron Dose-rate Conversion Factors for External Exposure of the Skin from Uniformly Deposited Activity on the Body Surface, *Health Phys.* **53**(2), 135-141, (1987).
- [7] IAEA, Generic procedures for

assessment and response during a radiological emergency, IAEA-TECDOC-1162, (2000).

- [8] NIRS-M-183, 放射線緊急事態時の評価および対応のための一般的手順, 放射線医学総合研究所, (2000).
- [9] D. Delacroix, J. P. Guerre, P. Leblanc, and C. Hickman, Radionuclide and Radiation Protection Data Handbook 2002, *Radiat. Prot. Dosim.* **98**(1), (2002).
- [10] P. H. Jensen, Atmospheric Dispersion and Environmental Consequences — Exposure from Radioactive Plume Pathways, Rep. Risø-M-2849(EN), Risø National Laboratory, (1992).

F. 健康危険情報

該当無し

G. 研究発表

口頭発表：

- 吉田忠義, 星勝也, 辻村憲雄, 岡田和彦；皮膚汚染における線量評価法の検討—様々な汚染サイズに対する端窓 GM 管の計数率と VARSKIN の活用—, 日本放射線安全管理学会第 15 回学術大会, P29, (2015).
- 山崎巧, 菅巧, 星勝也, 吉田忠義, 辻村憲雄, 高田千恵, 岡田和彦；皮膚汚染時の線量評価手順の検討—測定から記録まで—, 日本原子力学会 2017 年春の年会, 2B15, (2017).

H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

なし

表1 使用したサーベイメータ諸元

メーカー	型式	検出器	窓直径(cm) (窓面積(cm ²))	測定レンジ 上限	用途
アロカ (現在, 日立)	TGS-113 ^{a)}	GM	5.0 (20)	30 kcpm	表面汚染
アロカ (現在, 日立)	ICS-321 ^{b)}	電離箱	7.5 (44)	10 mSv/h	γ線 1cm 線量当量率, シールドを外せば β線検知可能
応用技研	AE-133B	電離箱	11 (95)	100 mSv/h	γ線 1cm 線量当量率, シールドを外せば 70μm 線量当量率

同一のモデルシリーズの製品の場合、一般に窓面積等の形状は変わらず、測定レンジだけが変わる。例えば、

a) TGS-133 の測定レンジ上限 : 100 kcpm

b) ICS-331 の測定レンジ上限 : 10 mSv/h, ICS-323C の測定レンジ上限 : 100 mSv/h

線源:⁹⁰Sr+⁹⁰Y(点線源)
測定器:電離箱式サーベイメータ
(ICS-321, 日立アロカメディカル)

体表面汚染を模擬するため、厚さ10 mmのアクリルの上に線源を設置

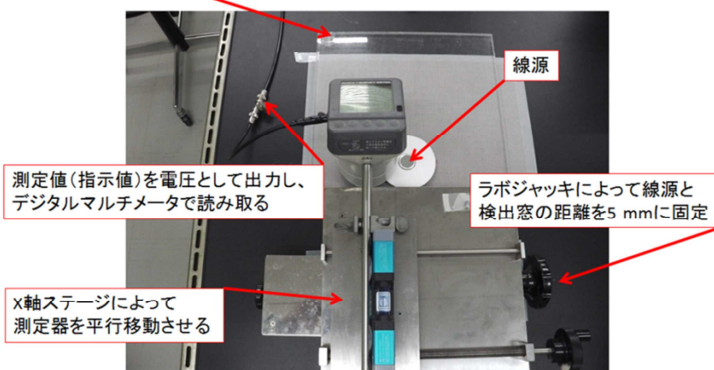


図1 実験配置

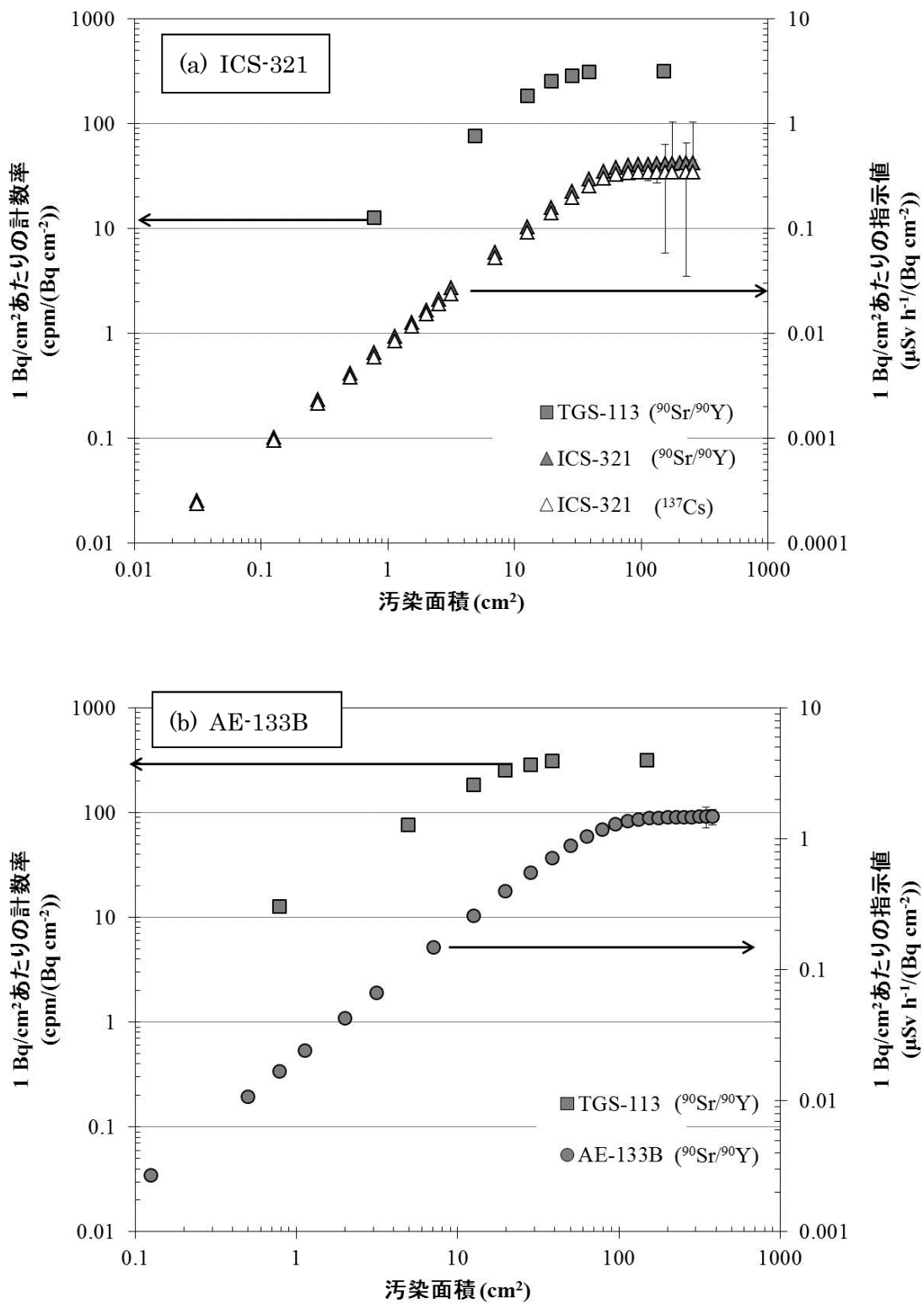


図2 汚染面積とサーベイメータ指示値の関係
 (⁹⁰Sr-⁹⁰Y : 合計 1 Bq/cm², ¹³⁷Cs : 1 Bq/cm²)

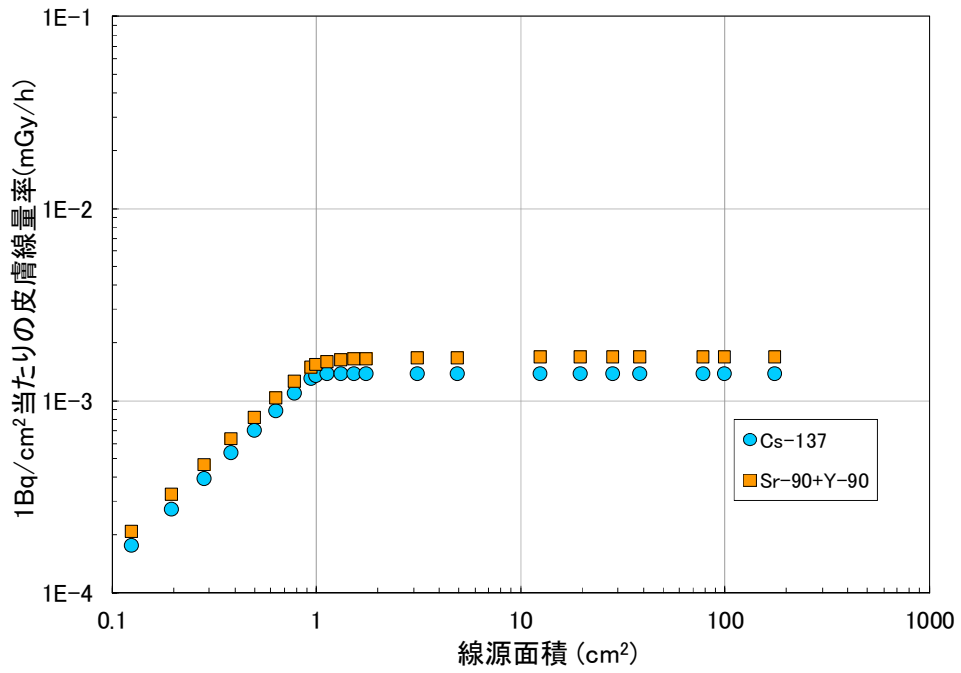


図3 汚染面積と線量率の関係 (^{90}Sr - ^{90}Y : 合計 1 Bq/cm^2 , ^{137}Cs : 1 Bq/cm^2)

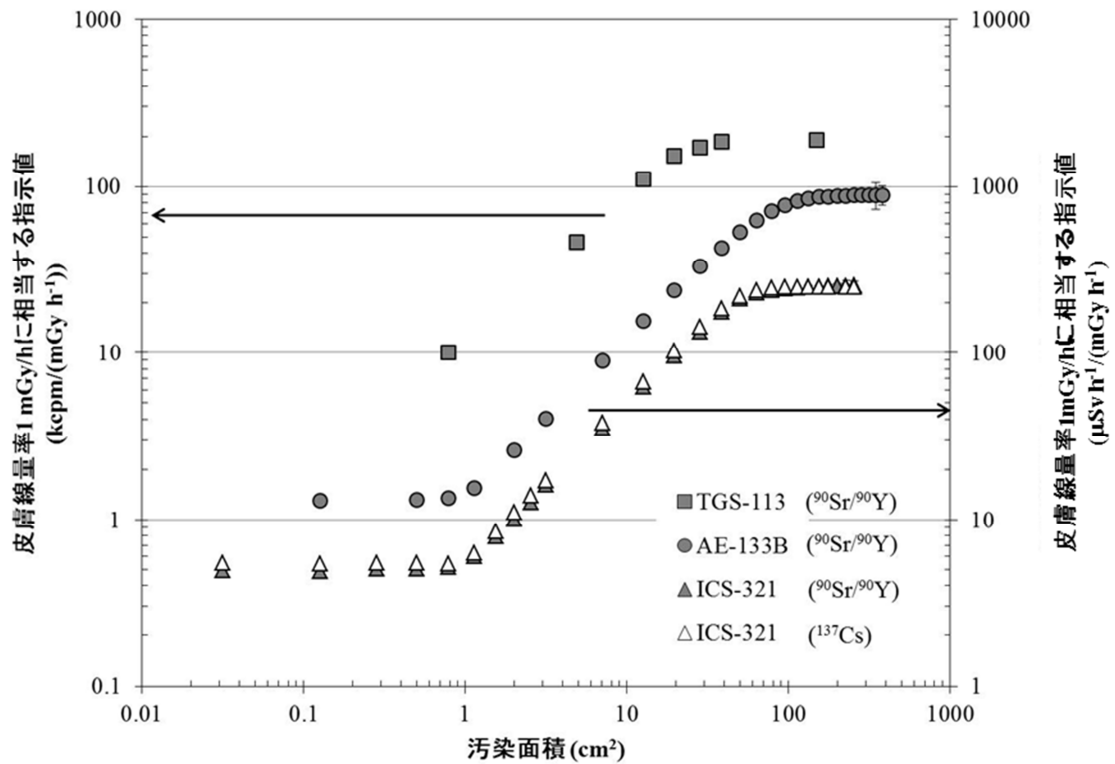


図4 汚染面積と皮膚線量率 1 mGy/h に相当するサーベイメータ指示値の関係

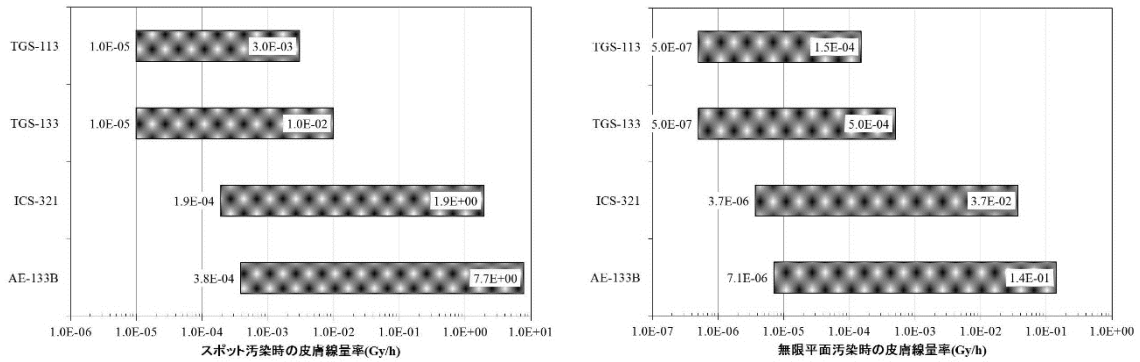


図5 各サーベイメータの皮膚線量率の測定可能範囲
 左：スポット汚染の場合，右：窓面積を超える広い汚染の場合

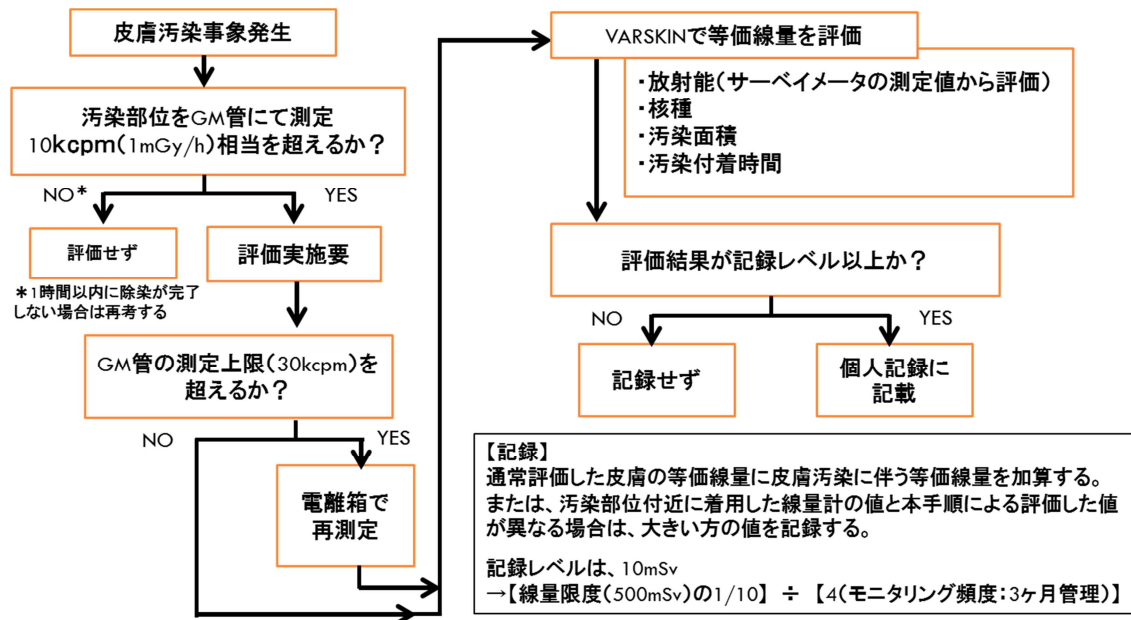


図6 線量評価フロー（核燃料サイクル工学研究所の例）

附録表 表面密度—皮膚線量率換算係数

換算係数の単位は、kBq/cm² 当たりの mGy/h (「液滴 (0.05 ml)」のケースのみ、kBq 当たりの mGy/h) である。

括弧内の百分率相対偏差は、VARSKIN4 による深さ 70 μ m での β 線皮膚線量率を基準とした。龍福ら、Kocher and K. F. Eckerman 及び ICRU レポートの換算係数は、 β 線 (電子含む) の係数であり、 γ 線の寄与を含まない。Delacroix らのハンドブックの皮膚換算係数は、本文中に明確な記述はないが、 β 線と γ 線を合計した値とみられる。また、IAEA-TECDOC-1162 には、 β 線の換算係数と明記されているが、Delacroix らのハンドブックの換算係数と値がほぼ等しい。

換算係数の出典	備考	方法
龍福廣，中戸喜寄，備後一義，立田初己福田整司，南賢太郎，点積分核法による β 線皮膚線量の評価，JAERI-M 7354，日本原子力研究所，(1977).	被ばく線量の測定・評価マニュアル (公益財団法人原子力安全技术センター，2000) に収録	点積分核法
D. C. Kocher and K. F. Eckerman, Electron Dose-rate Conversion Factors for External Exposure of the Skin from Uniformly Deposited Activity on the Body Surface, <i>Health Phys.</i> 53 (2), 135–141, (1987).		点積分核法
International Commission on Radiation Units and Measurements, Dosimetry for External Beta Rays, ICRU Report 57, (1997) ; 元データの出典は，W. G. Cross, N. O. Freedman and P. Y. Yong, Beta Ray Dose Distributions from Skin Contamination, <i>Radiat. Prot. Dosim.</i> 40 (3), 149–168 (1992).	被ばく線量の測定・評価マニュアル (公益財団法人原子力安全技术センター，2000) に収録	モンテカルロ法
IAEA, Generic procedures for assessment and response during a radiological emergency, IAEA-TECDOC-1162, (2000).	NIRS-M-183 (翻訳版)	
Delacroix, J. P. Guerre, P. Leblanc, and C. Hickman, Radionuclide and Radiation Protection Data Handbook 2002, <i>Radiat. Prot. Dosim.</i> 98 (1), (2002).		VARSKIN 2 (点積分核法，ただし後方散乱補正あり)